



# Étude de la fissuration des verres de stockage

Celine Mallet

## ► To cite this version:

Celine Mallet. Étude de la fissuration des verres de stockage : Comportement en condition de stockage géologique. Mécanique des solides [physics.class-ph]. Ecole Normale Supérieure, 2014. Français. NNT : ENS 10890923 . tel-01182762

**HAL Id: tel-01182762**

**<https://theses.hal.science/tel-01182762>**

Submitted on 3 Aug 2015

**HAL** is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



---

THÈSE DE DOCTORAT

Préparée à  
l'Ecole Normale Supérieure - Laboratoire de Géologie  
UMR 8538 - ED 560

Présentée par  
*Céline MALLET*

Pour obtenir le grade de  
DOCTEUR EN SCIENCES DE L'ÉCOLE NORMALE SUPÉRIEURE  
Discipline : Sciences de la Terre  
ENS - Paris, Paris Sciences et Lettres  
ÉCOLE DOCTORALE DES SCIENCES DE LA TERRE

---

*Étude de la fissuration des verres de stockage  
Comportement en condition de stockage géologique*

---

Soutenue publiquement le 10 Octobre 2014 devant :

Directeur de Thèse :	Pr. Y. GUÉGUEN	École Normale Supérieure, Paris, France
Co-encadrant :	J. FORTIN	Chargé de recherche CNRS, École Normale Supérieure, Paris, France
Rapporteurs :	Pr. G. DRESEN	GeoForschungZentrum, Potsdam, Allemagne
	Pr. G. PIJAUDIER-CABOT	Université de Pau, France
Examineurs :	H. BHAT	Chargé de recherche, IPGP, Paris, France
	Pr. G. CALAS	IPMPC, Université Pierre et Marie Curie, Paris, France
	F. BOUYER	Ingénieur de recherche, CEA site de Marcoule, France
Invité :	Pr. G. VIGGIANI	Laboratoire 3SR, Grenoble, France





VOICI quelques mots en préambule de ce manuscrit, qui me permettent de repenser à tous ceux qui, de près ou de loin, directement ou indirectement, m'ont accompagné tout au long de cette thèse.

Il y a tout d'abord mon directeur de thèse, Yves Guéguen. Il est difficile de résumer trois ans de collaboration en quelques mots. Yves Guéguen a su allier avec moi un très bon encadrement scientifique et humain. Il a pris du temps pour me former, me transmettre son savoir, me donner ses conseils et directives, et à côté de tout cela, il savait aussi me reconforter. Un tracas ? la solution : aller voir Yves, et tout allait tellement mieux ensuite. Pour tout ça je vous remercie beaucoup Yves.

Il y a aussi mon co-encadrant de thèse, Jérôme Fortin. Ici aussi il va être difficile de résumer. Par quoi commencer ? Sa pédagogie, qui m'a permis de maîtriser nos outils expérimentaux ? Le temps passé à revoir mes présentations, poster, ou à relire mon travail ? Ou plus simplement nos discussions amicales, son écoute, et ses conseils ? Je te remercie Jérôme pour tout ça et j'espère pouvoir après cette thèse continuer d'avoir à construire des projets avec toi.

Je tiens à remercier les collaborateurs industriels de ma thèse, à savoir AREVA et l'ANDRA. Avec leur suivi et leurs idées émises au cours des réunions d'avancement, notre projet a pu se diversifier. Je n'oublie pas bien sûr, l'encadrement du projet par Frédéric Bouyer du CEA. Je tiens à le remercier, en particulier pour les échantillons qu'il nous a fournis, le temps qu'il a passé à relire ce travail, et ces conseils en matière de géochimie. Il y a aussi Audrey Ougier-Simonin, ma prédécesseur sur ce projet, qui a pu me transmettre ses connaissances concernant les protocoles à suivre. Je tiens à remercier Georg Dresen, Gilles

Pijaudier-Cabot, Georges Calas et Harsha Bhat d’avoir accepté de participer à mon jury de thèse et à l’évaluation de mon travail. J’ai une pensée supplémentaire pour Cino Viggiani, merci, de m’avoir fait découvrir la recherche ainsi que le laboratoire de l’ENS.

À propos de la réalisation du projet de thèse, il y a de nombreuses personnes qui y ont contribué et que je voudrai remercier. Véronique Docquet, qui m’a suivie lors des comités de thèse ; Alexandre Schubnel, les thésards qui ont travaillé sur la même presse que moi, François, Aurélien et Qiong, ainsi que Yves Pinquier et Damien Deldicque pour leur aide expérimentale ; Jean Roux, qui m’a aidé à mieux comprendre les différentes méthodes de résolutions numériques ; et Yves Leroy pour m’avoir encadrée pendant mon monitorat. Enfin, je remercie le personnel du laboratoire qui a si souvent pu me sortir des traquas administratifs ou des beugs informatiques, je pense à Micheline, à Isabelle, à Angélique, à Françoise, à Delphine, à Pier-Paolo et à Nasser.

Réaliser cette thèse fut pour moi une expérience très agréable et enrichissante. C’est en partie dû à tous les à-côtés. Je pense à six mois de collocation, aux apéros en bords de Seine et à la Montagne, aux “Hey Apple”, aux sorties escalades à Antrebloc, à la découverte de Vienne (et de ses sous-sols), aux informations touristiques pour mon voyage au Chili, à mon anniversaire à Disney, à la sortie escalade à Fontainebleau,... Merci donc à Adeline<sup>(1)</sup>, Alexis, Alexandra, Eugénie, Silvia, Ohiane, Amaya, Aurélien, Olga, Gabriel, Stavros, Dimitri, Florian, Lucas, Fred, JB, Audrey, Hannah, Xavier, Justine, Moussette et Sandrine. Je souhaite remercier en plus, par avance, tous ceux que je vais recruter (et qui viendront) pour m’aider à préparer mon pot. Je vous propose une soirée pâtisserie la veille.

Je tiens à remercier en particulier Elsa car tu as su rester une amie très proche malgré les quelques mots désagréables que j’ai pu avoir à ton encontre quand tu étais en Inde. Merci d’avoir su dépasser ça, tout ne se serait pas aussi bien passé sinon.

Je terminerai en exprimant ma plus sincère reconnaissance à mes parents, merci de m’avoir soutenue, rassurée, et encouragée pendant toutes mes années d’étude. J’ai une pensée particulière pour ma mère qui a relu et corrigé les fautes d’orthographe de mon manuscrit. Il ne faut surtout pas lui en vouloir s’il en reste, elle n’a pas eu la version finale. Je prends l’entière responsabilité des fautes restantes. Merci aussi à mon frère et à ma sœur pour nos longues discussions téléphoniques qui permettent de souffler un peu en pensant à autre chose. Enfin, merci à Baptiste, pour être là avec moi.

---

(1). PS : bien joué pour le gâteau fissuré.

“Se flatte-t-on jamais d’atteindre l’horizon ?  
Faut-il pour cela renoncer à l’enchantement  
des routes tendues vers lui ?”

Alexandra David Neel.

*À mes parents...*



LE VERRE est un matériau utilisé, entre autres, par la France pour confiner les déchets nucléaires de haute activité à vie longue. Ce procédé de vitrification permet de confiner la radioactivité et de l'isoler du milieu naturel. Cependant, lors de la production de ces colis, des fissures apparaissent lors du refroidissement du verre. La fracturation a pour effet d'augmenter la surface potentielle d'échange déchet/environnement. Une circulation de fluide pourrait alors entraîner un relâchement des radionucléides dans l'environnement. Les contraintes lithostatiques liées aux conditions de stockage en profondeur peuvent induire une pression qui contribuera à fermer les fissures. Cependant, à long terme, une propagation des fissures peut avoir lieu. L'objet de cette thèse est d'évaluer l'effet du temps en condition de compression par des essais de fluage. Cette étude expérimentale est réalisée en laboratoire.

Le dispositif expérimental utilisé est une presse triaxiale qui permet de confiner des échantillons cylindriques de 40 mm de diamètre et de 80 mm de hauteur et de leur appliquer une contrainte axiale, une pression de pore ainsi qu'une variation de température. Avec cette presse, on peut contrôler et faire varier indépendamment la pression de confinement (de 0 à 100 MPa), la pression de pore (de 0 à 100 MPa) avec des fluides différents (gaz, eau, fluide corrosif) et la contrainte axiale (jusqu'à 700 MPa), à température ambiante (20°C) ou plus élevée (jusqu'à 100°C). Un réseau de capteurs fixés sur chaque échantillon nous a permis de mesurer au cours des expériences : (i) la déformation axiale et radiale, (ii) les vitesses de propagation des ondes élastiques P et S, et (iii) les émissions acoustiques. Les échantillons de verre fournis pour cette étude sont fabriqués par le CEA Marcoule à partir de colis inactifs, dans des conditions idéales de refroidissement lent permettant ainsi de minimiser les contraintes internes et évitant toute fissuration. Cette méthode contrôlée

permet d'avoir une bonne reproductibilité et qualité de matériau d'un échantillon à l'autre. Le réseau de fissures étudié est introduit par choc thermique de  $-300^{\circ}\text{C}$ .

Nous avons observé sur l'ensemble de nos expériences réalisées sur le verre non-fissuré : (i) un comportement quasi-parfaitement élastique-fragile du verre sain et (ii) une grande résistance mécanique.

Ensuite, le réseau initial des fissures a été observé et quantifié. L'étude de la microstructure du réseau de fissures initial a révélé que : (i) le choc thermique induit des contraintes de tension au bords de l'échantillon qui nucléent les fissures (elles se propagent ensuite jusqu'au cœur de l'échantillon), (ii) le réseau global est homogène et présente une symétrie transverse isotrope, et (iii) la densité de fissure du réseau peut être mesurée à partir d'images de microscopie électronique à balayage et aussi à partir des mesures de vitesses.

L'étude de fluage, réalisée sur le verre fissuré, a (i) mis en évidence les phénomènes de déformations lentes dans le verre, et (ii) a été interprété en terme de propagation sous-critique des fissures. Un modèle théorique, reliant une loi de propagation des fissures à une description de type "wing-crack", décrit bien le comportement observé expérimentalement.

Une étude de corrosion du verre est abordée en dernière partie. Elle permet de mettre en évidence les effets chimiques d'interaction entre le verre et l'eau. Cette étude montre que des effets de corrosion peuvent être mis en évidence dans le verre à l'échelle de temps du laboratoire. Cette corrosion chimique a un impact sur le comportement du verre, tant en régime de déformation à vitesse imposée qu'en fluage.



G<sub>LASS</sub> is a material that is used in France to confine nuclear wastes. The vitrification process is designed to confine the radioactivity and isolate it from the natural environment. However, during the package formation, cracks appear with the glass cooling. Fracturing increases the potential exchange between nuclear waste surface and the environment. Fluid flow could then release radionuclides into the environment. Lithostatic stresses related to storage conditions can contribute to crack closure. However, a crack propagation can be observed at long time scale. The purpose of this work is to investigate the long term effects of compressive stresses. This experimental study has been carried out in laboratory.

The experiments have been performed in a triaxial cell on cylindrical boro-silicate glass samples of 40 mm diameter and 80 mm length. The cell is designed to investigate the mechanical and physical properties of rocks under conditions of effective pressure and deviatoric stress : the confining pressure range is 0-100 MPa, the pore pressure range is 0-100 MPa, and the deviatoric loading is applied through a piston (maximum load of 700 MPa for a sample of 40mm diameter). The effect of the environment can be studied through the pore fluid that can be argon gas, water or other more corrosive fluid. Temperature can be increased up to 100°C. Axial and radial strains were measured using strain gauges. Elastic wave velocity measurements and acoustic emission were recorded using 16 piezoelectric sensors. The original boro-silicate glass samples are produced in ideal conditions by slowly cooling them such that crack formation is inhibited and internal stresses are minimized. This reproducible method was developed by the French Atomic Energy Commission (CEA) laboratory.

We observe on experiments performed on intact glass samples : (i) an almost perfectly elastic-brittle behavior and (ii) a high mechanical strength.

Then, the studied crack network is introduced with a thermal shock at  $-300^{\circ}\text{C}$ . Initial crack network has been studied. Then, the behavior under creep condition has been investigated. The microstructural study of the initial crack network reveals that : (i) the thermal shock induces tensile stresses at sample edges which nucleate cracks (they propagate to the core of the sample), (ii) the global network is homogeneous and has a transverse isotropic symmetry, and (iii) the crack density can be measured from SEM (Scanning Electron Microscopy) images and it can be inferred also from elastic wave velocity measurements.

Creep experiments, performed on cracked glass, have shown that (i) brittle creep has been evidenced in glass. (ii) Sub-critical crack propagation is the main micromechanism. A theoretical model, that links a crack propagation law to a “wing-crack” geometry, describes the experimentally observed behavior.

A study of glass corrosion is reported in the last section. It allows to identify the interaction between glass and water. This study shows that corrosion effects are evidenced at the laboratory timescale. This corrosion has an impact on the behavior of the glass, both in constant strain rate conditions and in creep conditions.

## Table des matières

<b>I</b>	<b>Introduction : Enjeux, Contexte et Problématique</b>	<b>1</b>
1	Contexte général	2
2	Pourquoi le verre ?	8
3	Problématique de l'étude	11
4	Plan du mémoire	12
<b>II</b>	<b>Bases théoriques et méthodes expérimentales</b>	<b>13</b>
1	Introduction	15
2	Notion d'endommagement	16
2.1	Élasticité d'un matériau . . . . .	16
2.2	Mode de propagation d'une fissure : l'idée de Griffith . . . . .	21
2.3	Endommagement, description et modélisation . . . . .	22
3	Dispositifs expérimentaux et Méthodologie	31
3.1	La presse triaxiale . . . . .	31
3.2	Les mesures et capteurs . . . . .	35
4	Le matériau	45
4.1	Les échantillons . . . . .	45
4.2	Comportement du verre sain . . . . .	47

<b>III</b>	<b>Microstructure d'un réseau de fissures</b>	<b>55</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>56</b>
<b>2</b>	<b>Calcul de la densité de fissure par deux approches</b>	<b>60</b>
2.1	Par observation de la microstructure . . . . .	60
2.2	Par mesure des vitesses des ondes élastiques . . . . .	68
<b>3</b>	<b>Comparaison des deux approches</b>	<b>70</b>
<b>IV</b>	<b>Déformations lentes et propagation sous-critique des fissures</b>	<b>83</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>85</b>
<b>2</b>	<b>Étude préliminaire du comportement du verre fissuré en déformation contrôlée</b>	<b>88</b>
2.1	Comportement mécanique . . . . .	88
2.2	Paramètres élastiques dynamiques et endommagement . . . . .	90
<b>3</b>	<b>Résultats expérimentaux en fluage secondaire</b>	<b>92</b>
3.1	Comportement en fluage (expérience C7) . . . . .	92
3.2	Effet des paramètres expérimentaux . . . . .	97
3.3	Longueur moyenne des fissures . . . . .	102
<b>4</b>	<b>Interprétation théorique du fluage secondaire</b>	<b>108</b>
4.1	Propagation sous-critique des fissures . . . . .	108
4.2	Géométrie des fissures et calcul de $K_I$ . . . . .	109
4.3	Prédiction théorique de la longueur des fissures . . . . .	112
4.4	Prédiction théorique des déformations . . . . .	114
4.5	Discussion du modèle . . . . .	117
<b>5</b>	<b>Comparaison du comportement du verre et de celui des roches</b>	<b>120</b>
<b>V</b>	<b>Mécanismes de rupture</b>	<b>125</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>126</b>
<b>2</b>	<b>Rupture fragile</b>	<b>127</b>
2.1	Rupture en compression . . . . .	127
2.2	Rupture en traction . . . . .	129

2.3	Critère de rupture . . . . .	131
<b>3</b>	<b>Rupture en fluage tertiaire</b>	<b>132</b>
3.1	La rupture observée au cours du temps . . . . .	133
3.2	Mécanisme de rupture . . . . .	136
3.3	Interprétation théorique du temps à la rupture . . . . .	142
3.4	Discussion du modèle . . . . .	145
<b>4</b>	<b>Critère de rupture complet</b>	<b>148</b>
<b>VI</b>	<b>Corrosion sous contrainte</b>	<b>153</b>
<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>154</b>
<b>2</b>	<b>Comparaison des effets mécanique et chimique</b>	<b>157</b>
2.1	Effet mécanique : comparaison des expériences réalisées à sec (C6) et saturé en eau minérale (C7) . . . . .	157
2.2	Effet chimique : comparaison des expériences réalisées en eau minérale (C7) et en eau pure (C21, C22) . . . . .	158
2.3	Comparaison des effets mécanique et chimique . . . . .	165
<b>3</b>	<b>Expériences complémentaires</b>	<b>167</b>
<b>4</b>	<b>Interprétation en terme de fissuration</b>	<b>169</b>
4.1	Surface fissurée . . . . .	169
4.2	Perméabilité et densité de fissure . . . . .	170
<b>VII</b>	<b>Conclusion générale</b>	<b>173</b>



## Table des figures

1	Consommation d'électricité en France. . . . .	3
2	Répartition de la production et des besoins en électricité en France en 2012. . . . .	3
3	Classement des déchets radioactifs. . . . .	5
4	Processus de vitrification et de stockage des déchets radioactifs HA. . . . .	7
5	Arrangement atomistique de la silice en 2D. . . . .	8
6	Anciens verres de différentes époques. . . . .	9
7	Axes de symétrie de la géométrie TI. . . . .	20
8	Propagation d'une fissure selon trois modes. . . . .	21
9	Principe de la décomposition d'un VER. . . . .	23
10	Principe de l'hypothèse de NIA. . . . .	23
11	Schéma d'une inhomogénéité de forme ellipsoïdale. . . . .	24
12	Évolution des inhomogénéités en fonction de leur facteur de forme. . . . .	24
13	Presse triaxiale du Laboratoire de Géologie de l'ENS. . . . .	32
14	Protocole de rupture. . . . .	34
15	Protocole de fluage. . . . .	34
16	Photographie de la chambre de confinement et d'un échantillon muni de capteurs. . . . .	35
17	Jauges de déformation. . . . .	36
18	Comparaison des mesures de déformation axiale, issues des jauges axiales et des LVDT. . . . .	37
19	Comparaison des mesures de déformation volumique, issues des paires de jauges et de la variation du volume de pore. . . . .	39
20	Principe de mesure de la perméabilité. . . . .	40

21	Différentes échelles d'analyse d'une roche dans son environnement. . . . .	41
22	Disposition et principe de mesures des VOE. . . . .	42
23	Traitement du signal : pointage des temps d'arrivée. . . . .	42
24	Principe de la mesure des EA. . . . .	43
25	Images MEB de la structure du verre sain. . . . .	46
26	Barreau de verre brut et échantillon obtenu après découpe. . . . .	47
27	Comportement mécanique du verre sain pour différentes pressions de confinement. . . . .	48
28	Endommagement mécanique lors d'un test de rupture sur un verre sain. . .	50
29	Représentation de l'enveloppe de rupture du verre sain dans un plan de Mohr-Coulomb. . . . .	51
30	Photographie d'échantillons après rupture à différentes pressions de confinement. . . . .	52
31	Principe de l'initiation du réseau de fissures par trempe. . . . .	57
32	Images de fissures dans le verre et de leurs intersections. . . . .	58
33	Référentiel de description de l'orientation des fissures. . . . .	60
34	Réseau de fissures d'un échantillon traité à 100°C. . . . .	61
35	Réseau de fissures d'un échantillon traité à 200°C. . . . .	62
36	Réseau de fissures d'un échantillon traité à 300°C. . . . .	63
37	Histogramme de la répartition des rayons des fissures pour un choc thermique à 300°C. . . . .	67
38	Vitesses des ondes élastiques en condition hydrostatique, d'un échantillon fissuré par un choc thermique à 300°C. . . . .	68
39	Courbes de fluage typiques présentant les deux premiers stades du fluage. .	86
40	Comportement mécanique du verre fissuré pour trois expériences à trois pressions de confinement effectives différentes. . . . .	89
41	À $\sigma'_3=10$ MPa, évolution de l'endommagement pendant la montée en contrainte différentielle. . . . .	90
42	Déformation volumique en fluage (expérience C7). . . . .	93
43	Suivi de l'endommagement en condition de fluage. . . . .	94
44	Taux d'EA pour l'expérience C7. . . . .	96
45	Effet de la contrainte différentielle sur la vitesse de déformation volumique en fluage secondaire. . . . .	98



46	Effet de la pression de confinement effective sur le comportement en fluage.	99
47	Effet de la pression de confinement effective sur le comportement des vitesses et de l'endommagement en fluage. . . . .	99
48	Effet de la température sur les déformations volumiques en fluage. . . . .	100
49	Principe d'un mécanisme thermiquement activé. . . . .	101
50	Vitesse de déformation volumique pour un palier pour les trois températures considérées. . . . .	101
51	Effet de la température sur le comportement des vitesses et de l'endomma- gement en fluage. . . . .	102
52	Géométrie d'une fissure sphéroïdale. . . . .	103
53	Comparaison des méthodes de calcul de la solution $l(t)$ . . . . .	106
54	Géométrie du modèle micro-mécanique. . . . .	110
55	Prédiction des longueurs de fissures. . . . .	113
56	Comparaison des résultats du modèle et des données en termes de longueurs de fissures. . . . .	113
57	Vitesse de déformation volumique en fluage secondaire en fonction de la contrainte différentielle. . . . .	115
58	Données de déformation volumique pour l'expérience C7 comparées aux pré- dictions du modèle. . . . .	116
59	Effet de la rugosité. . . . .	117
60	Effet de la variation d'énergie d'activation. . . . .	118
61	Prédiction des déformations volumique dans des conditions d'entreposage. .	119
62	Comparaison entre verre et roches. . . . .	121
63	Vitesse de déformation volumique en fluage secondaire pour le grès Darley Dale. . . . .	122
64	Rupture fragile d'un échantillon fissuré en compression. . . . .	128
65	Photographie de l'échantillon C13. . . . .	130
66	Fissures plumes observées en laboratoire et sur le terrain. . . . .	130
67	Enveloppe de rupture du verre fissuré. . . . .	131
68	Courbe de fluage typique présentant les trois stades du fluage. . . . .	132
69	Déformation axiale au cours du temps pendant la rupture en fluage. . . . .	133
70	Déformation axiale au cours du temps pendant la rupture en fluage pour différents paramètres expérimentaux. . . . .	134

71	Photographies des échantillons <i>post-mortem</i> et localisation des EA durant l'évènement de rupture. . . . .	136
72	Image MEB de l'échantillon <i>post-mortem</i> de l'expérience C17. . . . .	139
73	Répartition des fissures de l'échantillon <i>post-mortem</i> C17. . . . .	139
74	Réseau de fissure horizontal de l'échantillon <i>post-mortem</i> C17. . . . .	140
75	Processus de propagation des fissures en fluage fragile. . . . .	141
76	Prédiction théorique du temps à la rupture. . . . .	144
77	Effet de la température et de l'énergie d'activation sur le temps à la rupture prédit. . . . .	146
78	Effet de la pression de confinement et de la charge axiale. . . . .	146
79	Enveloppe de rupture du verre en diagramme P/Q, complétée par tous les cas de figure. . . . .	149
80	Enveloppe de rupture du verre dans un plan ( $\sigma_1/\sigma_3$ ). . . . .	150
81	Comportement en fluage de l'expérience C6 réalisée en condition sèche. . .	157
82	Évolution du pH de l'eau pure mesuré en sortie de l'échantillon. . . . .	159
83	Microstructure de l'échantillon issu de l'expérience C21. . . . .	160
84	Réseau de fissure de l'échantillon issu de l'expérience C21. . . . .	161
85	Réseau de fissure horizontal de l'échantillon C21. . . . .	161
86	Comportement mécanique de l'expérience C21. . . . .	164
87	Déformation volumique pendant l'expérience C21 de corrosion sous contrainte.	165
88	Densités de fissure pour C6 C7 et C21 inversées depuis les mesures de vitesse.	166
89	Comportement mécanique de C4, C15 et C22_2. . . . .	168
90	Perméabilité obtenue au cours de l'expérience C21. . . . .	170

## Liste des tableaux

1	Composition chimique des principaux éléments du verre étudié. . . . .	45
2	Récapitulatif des expériences réalisées sous conditions déviatoriques sur le verre sain. . . . .	47
3	Récapitulatif des paramètres du verre sain. . . . .	49
4	Vitesses et paramètres élastiques obtenus à pression ambiante pour le verre sain. . . . .	49
5	Densité de fissure moyenne mesurée dans chaque coupe radiale. . . . .	64
6	Densité de fissure globale obtenue pour les échantillons C19, C18 et C11. . .	66
7	Densité de fissure verticale, $\alpha_1$ , horizontale, $\alpha_3$ et densité globale, $\rho_c$ . . . .	70
8	Récapitulatifs des tests préliminaires de rupture réalisés. . . . .	87
9	Récapitulatifs des tests de fluage réalisés. . . . .	87
10	Mesure du module de Young en condition déviatorique. . . . .	88
11	Modules de Young et coefficients de Poisson obtenus en conditions déviatoriques. . . . .	91
12	Valeurs des paramètres de la modélisation de la déformation. . . . .	105
13	Coefficients et paramètres intervenant dans les équations (59) et (68). . . .	112
14	Récapitulatifs des tests de rupture réalisés en déformation contrôlée. . . .	127
15	Dernières mesures de vitesses réalisées avant la rupture des échantillon en fluage tertiaire. . . . .	137

16	Récapitulatif des résistances maximales atteintes quelque soit le type d'expérience. . . . .	148
17	Récapitulatif des tests de fluage considérés dans cette étude. . . . .	155
18	Récapitulatif de la densité de fissure, $\rho_c$ , obtenue par microstructure et par mesure de vitesse. . . . .	162
19	Composition principale du verre et des deux échantillonnages d'eau pure. .	162
20	Récapitulatif des tests de rupture réalisé sur des échantillons corrodés. . . .	167
21	Récapitulatif des tests réalisés par ordre chronologique . . . . .	193
22	Conditions et résultats des tests de rupture . . . . .	194
23	Conditions et résultats des tests de fluage. . . . .	194
24	Conditions et résultats des tests de fluage considéré dans l'étude de la corrosion du verre . . . . .	194

## Première partie

# Introduction : Enjeux, Contexte et Problématique

L'EXPLOSION de la consommation d'électricité à partir des années 70, a entraîné une nécessité de produire toujours plus. Optimiser cette production d'énergie et s'occuper au mieux de la gestion des déchets qui en sont issus, sont devenus des problématiques majeurs pour notre société. En France par exemple, la consommation totale d'électricité était de 541,5 TWh en 2010, contre 140 TWh en 1970. Afin de gérer au mieux la production il est important de comprendre avec précision ce besoin car on ne produit pas de la même façon l'électricité, en fonction de son utilisation. Établissons une petite liste non-exhaustive des consommations courantes pour nous donner un ordre d'idée du détail de l'utilisation de cette électricité. Au quotidien, à la maison, 1 KWh, c'est entre 3 et 5h de télévision, c'est ce que consomme un réfrigérateur en une journée. Dans la salle de bain, c'est un cycle de lavage de linge, mais il faut en moyenne 2 KWh pour prendre une douche chaude. Avec 1 KWh, on peut aussi améliorer le chauffage de son appartement pendant 45 min l'hiver, etc... Ceci fait une consommation de base, en moyenne de 15 KWh par personne et par jour avec en plus certains pics en fonction de nos activités. Ainsi, la plus grande partie de la consommation générale d'électricité provient de l'habitat (68,1%, soit 369 TWh). Si on ajoute à cela, les secteurs liés à l'industrie, ou aux transports on obtient la consommation globale d'électricité en France (dont la part des différents secteurs est indiquée Figure 1a).

Ainsi, depuis les années 1970, on a observé un fort accroissement des besoins en électricité. La majeure partie est due à l'augmentation de la consommation d'électricité des particuliers (multipliée par 7,2 depuis 1970 - Figure 1b). Ce fort accroissement est poussé par le nombre toujours plus élevé de ménages, le développement (bien qu'en ralentissement) du chauffage électrique, et des besoins croissants liés notamment aux appareils électroménagers et numériques.

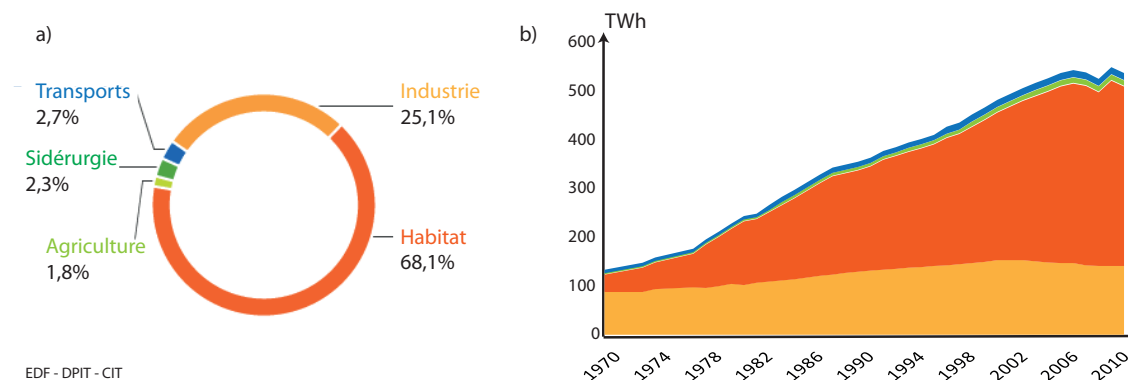


FIGURE 1 – **Consommation d'électricité en France.** a) En 2012, consommation de l'électricité par secteurs. b) Évolution de cette consommation depuis 1970. Source : EDF-DPIT-CIT.

Il faut distinguer deux utilisations de l'électricité. Il y a la consommation “de base” : du chauffage en hiver, de la lumière en soirée, une circulation de transport en commun,... et il y a la consommation “de pointe” : une vague de froid aux mi-saisons, un besoin d'irrigation exceptionnel un jour d'été, un chantier,... Ces deux catégories ne nécessitent pas le même type de production d'électricité. Les Figures 2 montrent les différentes sources de la production d'électricité en France (a) et à quel besoin elles répondent au cours d'une journée type (b). La production totale d'électricité est issue de trois principales sources : le nucléaire (74,8% en 2012), l'hydraulique (11,7% en 2012) et le thermique (8,9% en 2012). Le reste est issu d'énergie renouvelable et ne représente que 4,6% de la production totale en 2012.

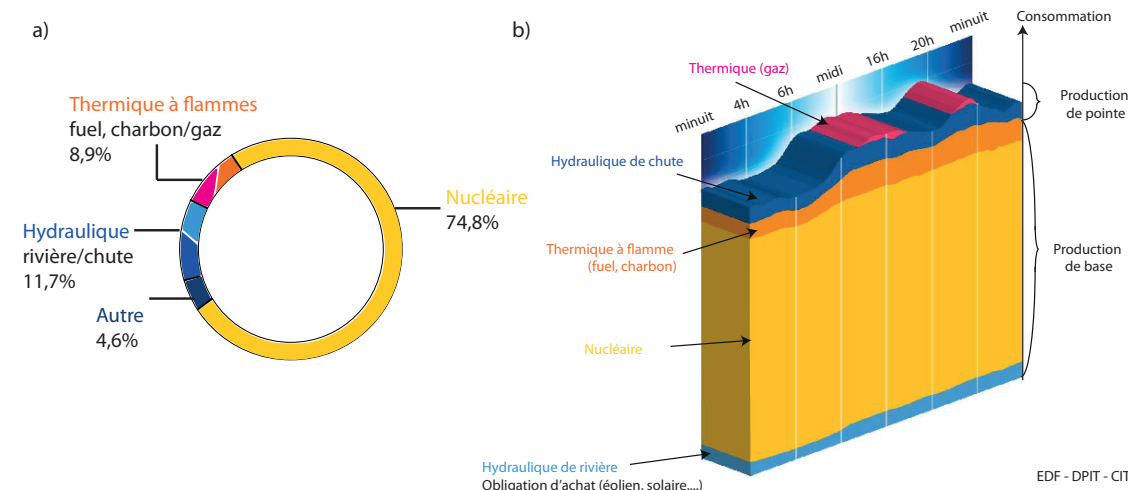


FIGURE 2 – **Répartition de la production et des besoins en électricité en France en 2012.** a) En 2012, production d'électricité par moyen de production. b) Répartition en section “de base” ou “de pointe” lors d'une journée de forte consommation en hiver. Source : EDF-DPIT-CIT.

Voyant ces différents moyens de productions, on comprend qu'ils n'ont pas tous la même utilité. On ne va pas par exemple considérer l'hydraulique de chute pour des besoins quotidiens et réguliers. Cette production est en effet transitoire. Elle produit de l'électricité très vite, s'arrête immédiatement, et met du temps à se recharger. À l'inverse on n'utilise pas l'énergie solaire pour une production occasionnelle. Ainsi, la production en électricité répondant aux besoins "de base" est assurée par le nucléaire, l'hydraulique de rivière et le thermique de flamme (centrales à charbon ou à fuel). La production en électricité pour les périodes "de pointe" est assurée par l'hydraulique de chute et le thermique à gaz. Le reste des énergies renouvelables constitue aussi la production "de base".

LA part du nucléaire est la plus importante. En France, la production d'électricité d'origine nucléaire s'est largement développée à partir de 1974, au lendemain du premier choc pétrolier. Cette crise a révélé la dépendance énergétique du pays vis-à-vis des hydrocarbures. C'est afin de s'en affranchir que la France a très vite misé sur l'énergie nucléaire. Cette énergie n'émet pas de gaz à effet de serre, elle est utilisable en grandes quantités grâce à la puissance qu'elle génère, et est très compétitive. Du fait du temps requis pour la mise en marche d'une centrale nucléaire et de la quantité de production, on comprend que l'électricité ainsi produite fasse partie de la production "de base".

Un réacteur nucléaire produit du courant en utilisant des atomes d'uranium 235. Leur fission crée de la chaleur qui transforme l'eau en vapeur d'eau. La circulation de la vapeur fait ensuite tourner une turbine reliée à un alternateur qui produit alors le courant électrique. Le combustible des réacteurs sont des pastilles (de 1,35 cm de haut) d'uranium 235 réduit en poudre et comprimé. Ces pastilles séjournent entre quatre et cinq ans dans un réacteur. Au fur et à mesure des années, elles s'épuisent en uranium 235 et doivent être remplacées. Les pastilles usées restent alors trois ans en piscine de refroidissement puis sont retraitées par l'entreprise AREVA. Pour cela, l'usine de la Hague a été conçue dans le département de la Manche. Le retraitement des combustibles consiste à séparer mécaniquement ou chimiquement les différents éléments présents (la partie déchet et la partie réutilisable). 96% sont recyclés. Le reste constitue les déchets ultimes.

Si on considère en plus des déchets ultimes, les outils, textiles, pièces usagées, etc..., qu'il faut régulièrement changer dans une centrale nucléaire, il en résulte encore plus de déchets radioactifs. Cependant ils n'ont pas tous les mêmes caractéristiques et une gestion différente est prévue en fonction de leur dangerosité et de leur durée de vie radioactive (Figure 3). On considère 5 groupes de déchets : les déchets à haute activité à vie longue (HA) issus



de la réaction nucléaire (0,2% du volume total), à moyenne activité et à vie longue (3%), à faible activité et à vie longue (7%), à faible et moyenne activité, et à vie courte (63%) et à très faible activité (27%). Ce classement de déchets peut être simplifié en considérant d'une part les déchets à vie courte, et faible voire moyenne activité (90%) et d'autre part, les déchets à vie longue et haute activité (10%). En tout ils représentent en 2010, 1 320 000 m<sup>3</sup>. Juridiquement, ces déchets relèvent de la loi Bataille de 1991, modifiée en 2006 et sont gérés par l'ANDRA (Agence Nationale pour la gestion des Déchets RAdioactifs).

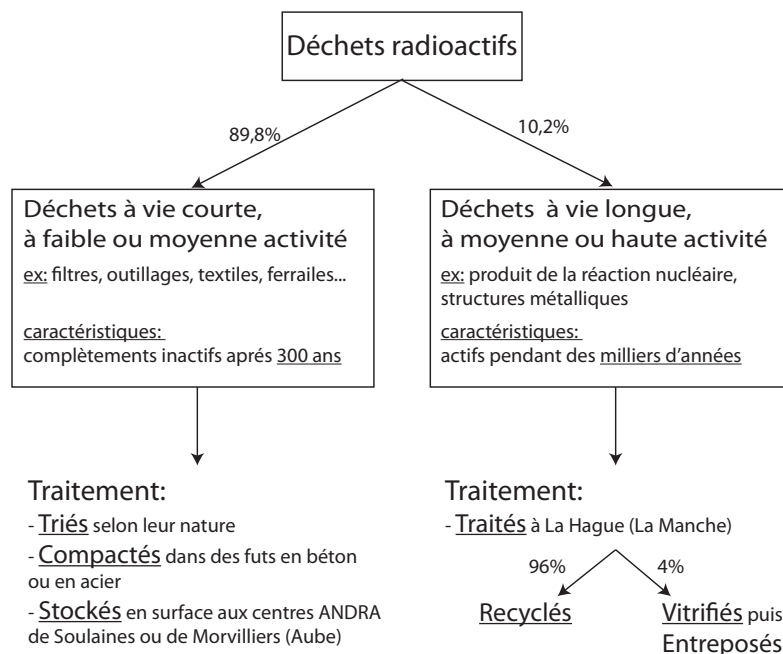


FIGURE 3 – Classement des déchets radioactifs et mesure prévue en fonction de leur dangerosité ou de leur durée de vie.

Dans notre étude nous nous concentrons sur le procédé de vitrification des déchets à Haute Activité (HA). Ils représentent la plus faible proportion de déchets mais représentent aussi la plus forte proportion de niveau de radiation (96%). Leur traitement est donc une problématique majeure.

Le procédé de vitrification, schématisé en Figure 4, se déroule dans l'usine de retraitement de La Hague (La Manche) et débute par la calcination des solutions de produits de fission (déchets HA) (a). Ils se présentent sous la forme d'une poudre noire et sont alors immédiatement incorporés à une pâte de verre en fusion. Le mélange est ensuite coulé dans un colis en acier (b). Ce dernier contient environ 400 Kg de verre pour environ 70 Kg de déchets. La vitrification des déchets radioactifs permet d'obtenir un composé stable et facile à stocker. L'intérêt d'utiliser ce procédé de vitrification est lié aux propriétés du verre. Ce matériau présente en effet de nombreux atouts comme celui d'être peu sensible à

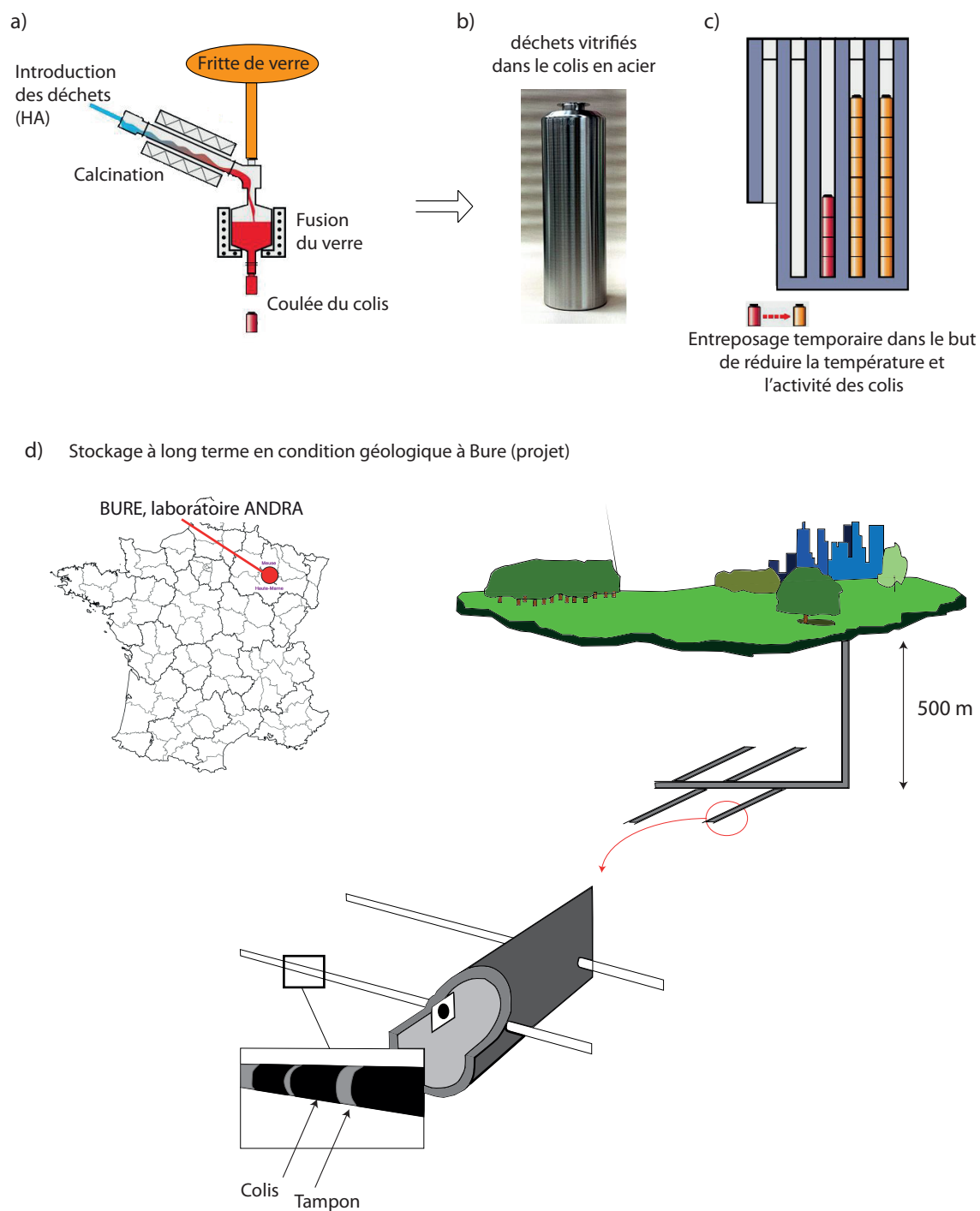
l'irradiation.

Les colis sont alors entreposés temporairement (pendant une centaine d'années) dans des puits ventilés, sur place, à La Hague (c). Le projet de stockage des déchets radioactifs (d) envisage qu'après leur refroidissement, les déchets piégés dans les colis de verre, seraient stockés dans un centre, construit dans une couche d'argile à environ 500 m de profondeur. Le principe de ce stockage réversible, des déchets à vie longue en couche géologique profonde et stable, à l'horizon 2025, s'appuie sur les résultats des 15 années de recherche prévues par la Loi Bataille de 1991, notamment l'étude du stockage en couche géologique dans le laboratoire ANDRA à Bure (Haute-Marne).

Considérant l'objectif global de stockage des colis de verre, trois projet d'études sont distingués. Il y a les études portant sur la stabilité de l'argile et de son comportement ; les études concernant les infrastructures bétonnées ; et également les études sur le verre et son comportement avec le temps. C'est dans ce troisième domaine que notre étude se situe. Elle fait partie d'un projet d'étude du comportement du verre fissuré, dirigé par le CEA Marcoule (Gard) et concerne plusieurs laboratoires :

- le laboratoire Icube de l'Université de Strasbourg lequel étudie, par modélisation à échelle 1, l'endommagement du verre suite à des gradients de température, des variations de coulées, ou encore des sollicitations mécaniques,
- le laboratoire du LMS à l'École Polytechnique qui étudie expérimentalement le comportement d'une fissure dans des échantillons réduits de verre,
- le laboratoire de Géologie de l'École Normale Supérieure où se place le travail présenté ici.

Dans le cadre de ce projet d'étude avec le CEA, des travaux précédents ont déjà vu le jour sur la modélisation de l'évolution du verre [Dubé et al., 2010; Barth et al., 2013] et une campagne d'expérimentation en compression a été commencée [Ougier-Simonin et al., 2010, 2011; Doquet et al., 2012].



**FIGURE 4 – Processus de vitrification et de stockage des déchets radioactifs HA.** La première étape (a) consiste à calciner les déchets, les incorporer au verre, faire fondre le mélange et couler ensuite le colis (b). L'étape suivante (c) est un entreposage temporaire en colonne. Enfin l'étape ultime consisterait en un stockage à long terme dans des alvéoles situés à 500 m de profondeur dans une couche géologique d'argile (d). Cette étape n'est pour l'instant qu'un projet qui serait réalisé à Bure (Haute-Marne)

## Pourquoi le verre ?

LE verre est un matériau amorphe, c'est-à-dire non cristallin. Il est le résultat d'une phase liquide surfondue qui est solidifiée au point de sa transition vitreuse. Le verre est en quelque sorte un liquide figé. De ce fait il présente un désordre structural important et à grande distance on n'observe pas d'arrangement particulier. Du fait de son réseau désordonné, le verre peut inclure au sein de sa matrice de silice une grande quantité et variété d'éléments [Angeli, 2000]. En effet, grâce à ce désordre on trouve des espaces plus ou moins grands entre les atomes permettant la fixation de différents éléments (Figure 5).

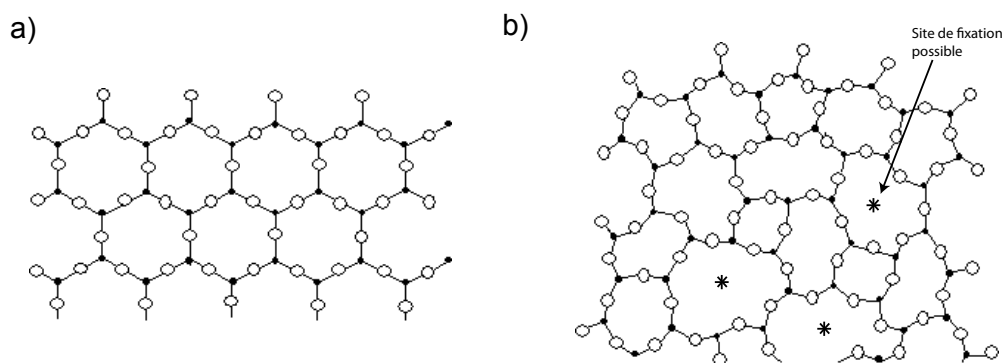


FIGURE 5 – **Arrangement atomistique de la silice en 2D.** a) Arrangement structuré. b) Silice vitreuse.

Les verres sont insensibles à la corrosion due à l'air ou à l'eau. Cependant cette altération, qui dépend de leur composition, reste très faible. En effet on a retrouvé des verres en bonne conservation datant de plusieurs centaines d'années et même de plusieurs millions d'années. La Figure 6 nous en donne un aperçu. Des verres datant de la fin du 2<sup>ème</sup> siècle avant notre ère ont été retrouvés après avoir été altérés pendant près de 1800 ans en eau de mer (a). Des blocs entiers de verre archéologique provenant d'une épave phénicienne ont été découverts près de l'île des Embiez (Var) en mer Méditerranée et ont été étudiés

pour décrire leur altération [Verney-Carron et al., 2008]. La fabrication du verre soufflé remonte à 1500 ans avant notre ère en Mésopotamie. À partir de cette époque on commence à réaliser des verres transparents selon des techniques semblables aux céramiques. Le verre est alors considéré comme un matériau rare et précieux. Des perles de verre en très bon état de conservation datent du cinquième siècle avant notre ère (b). Des verres naturels (l'obsidienne - c) se forment à partir de coulées de lave très épaisses et riches en silice et sont le plus souvent datées du Pliocène (2 à 4 millions d'années). On en trouve à l'heure actuelle principalement dans les îles volcaniques (comme la Sardaigne, les Îles Éoliennes, les îles Canaries, l'Islande,...) mais aussi au Mexique, au Pérou,... Les observations sur ces échantillons soulignent la faible sensibilité des verres à la corrosion et à l'altération due au temps. Cette propriété représente un atout essentiel dans la problématique du stockage à long terme des déchets radioactifs.



FIGURE 6 – **Anciens verres de différentes époques qui ont subi une altération au cours du temps mais qui gardent une bonne conservation.** a) Bloc de verre archéologique datant de la fin du 2<sup>ème</sup> siècle avant notre ère (Photographie issue de l'étude de Verney-Carron et al. [2008]). b) Photographie d'un bracelet en perles de verre datant du V<sup>ème</sup> s av. J.-C., provenant de la nécropole de Prosnes (Marne), Musée Saint Rémi (Reims - Marne). c) Bloc d'obsidienne découverte au Mexique (Pliocène, 2 à 4 millions d'années).

UNE tout autre raison d'étudier le verre fissuré se rapporte aux problématiques des géosciences et de la mécanique des roches et de la fracture. Les propriétés de transport et mécaniques des roches sont principalement contrôlées par les fissures [Brace et al., 1968]. Le verre présente alors un grand intérêt de par sa structure amorphe. Grâce à cette propriété, l'observation des fissures y est très facile. Ainsi le verre fut un matériau de choix pour les premières études fondamentales de la mécanique de la fracture. En effet, dès les années 1920 ce domaine se développe, et grâce à des observations faites sur des fibres de verre, Griffith [1921] établit une théorie qui relie les contraintes en tête de fissure à la longueur de la fissure. À sa suite, la mécanique de la fracture a pu être développée dans les roches aussi bien que dans les autres matériaux solides. Les travaux de Rice and Rosengren [1968] et

Rudnicki and Rice [1975] ont contribué à utiliser la mécanique de la fracture en géoscience. Les résultats sur le verre constituent un socle de base reconnu pour étudier les roches [Barrenblatt, 1962; Anderson and Grew, 1977; Meredith and Atkinson, 1983; Lockner, 1993; Brantut et al., 2013]. Les études sur le verre sont nombreuses du fait de son importance fondamentale. La structure des fissures issues de traitement thermique y a déjà été observée afin de décrire des phénomènes fractals [Brechet and Neda, 1995]. Les fissures, dues à des impacts, ont été étudiées dans le verre pour comprendre l'effet d'une contrainte appliquée à très haute vitesse [Argon, 1959a,b]. La propagation des fissures soumises à des contraintes constantes et à des circulations de fluides a été observée dans le verre lors d'expériences en traction [Baker and Preston, 1946; Mould and Southwick, 1959; Wiederhorn, 1966; Wiederhorn and Bolz, 1970; Adams and McMillan, 1977]. Plus tard, basées sur les observations dans le verre, des études expérimentales semblables ont été réalisées dans des céramiques puis dans les roches [Kranz, 1980; Atkinson, 1982; Lockner, 1993]. De nombreuses autres études expérimentales sur le verre ont été réalisées [Freiman, 1984; Michalske and Bunker, 1987; Sakaue et al., 2009], ainsi que des études de modélisation théoriques et numériques [Orowan, 1944; Charles, 1958; Sun and Khaleel, 2004; Lu et al., 2005; Philippou, 2001a,b].

Soulignons que toutes les études expérimentales sur la fissuration des verres ont été réalisées en essai de tension/traction, alors que d'un point de vue des problématiques des géosciences et du stockage, il est important de considérer des conditions de compression [Anderson, 1995].

## Problématique de l'étude

LORS du refroidissement des colis de verre, dans leur conteneur en acier, des contraintes de tension apparaissent et fissurent le verre. Dans les colis de déchets radioactifs, les fissures induites par ce refroidissement pourraient induire une perméabilité non nulle et donc une circulation des éléments radioactifs vers l'extérieur. Une étude expérimentale à échelle réduite est proposée ici. En effet, il est possible en laboratoire d'introduire un réseau de fissures dans des échantillons de verre. Notre travail expérimental a donc pour but d'étudier l'évolution de ce réseau de fissures sous pression et conjointement l'évolution du comportement mécanique.

Le verre sera considéré aussi dans cette étude, comme une référence pour les roches naturelles. Le couplage d'une étude expérimentale et théorique sur les fissures dans le verre, présente ainsi un double intérêt : tant du point de vu du stockage des déchets radioactifs, que du point de vue fondamental de la mécanique des roches et de la fracture.

La problématique de cette étude est de documenter l'évolution d'un réseau de fissures sous chargement contrôlé, au cours du temps. Le réseau initial sera précisé. Ensuite, une étude expérimentale montrera l'évolution des fissures soumises à une contrainte constante au cours du temps. L'intérêt de cette étude expérimentale est de mettre en évidence et d'analyser les mécanismes sous-jacents à ces phénomènes lents, de les décrire en terme de modèle théorique, de prédire leur évolution à long terme, et d'extrapoler si possible au cas des roches. Les conditions de température, de pression de confinement, de circulation de fluide,... seront contrôlées.

LES objectifs globaux à toute cette étude peuvent se résumer en quatre axes. Une cinquième partie présentera les méthodes théoriques et expérimentales utilisées :

- La première partie présente une étude bibliographique sur les bases de la mécanique de l'endommagement et de la fissuration des matériaux, les méthodes expérimentales utilisées ainsi que le matériau de base.
- Ensuite, le premier axe d'étude est focalisé sur le réseau initial de fissures introduit dans le verre par traitement thermique. Pour cela nous avons réalisé une étude de la microstructure par Microscopie Électronique à Balayage (MEB).
- Le second axe d'étude est le suivi de l'évolution de ces fissures au cours du temps. À cet effet, des séries d'expériences ont été réalisées en condition de fluage sur du verre thermiquement pré-fissuré. La propagation des fissures est mise en évidence et modélisée. La question est de savoir comment cette propagation lente de fissure peut expliquer le fluage.
- Un troisième axe d'étude porte sur l'étude de la rupture des échantillons, en particulier, la rupture liée à la propagation, à contrainte constante, des fissures. Cet axe est étudié à partir des mêmes expériences que le précédent.
- Enfin, le dernier point porte sur l'étude de la corrosion sous contrainte. Le principe est de comparer tout d'abord l'influence du fluide de pore (comparant un cas sec, puis un cas saturé en eau), puis l'influence d'un circuit ouvert de fluide chimiquement corrosif. Les effets chimiques de la corrosion sur le comportement mécanique des fissures ont été mis en évidence et analysés.



# Deuxième partie

## Bases théoriques et méthodes expérimentales

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>15</b>
<b>2</b>	<b>Notion d'endommagement</b>	<b>16</b>
2.1	Élasticité d'un matériau . . . . .	16
2.1.1	Comportement élastique et Loi de Hooke . . . . .	16
2.1.2	Cas particuliers . . . . .	16
2.1.3	Notation tensorielle et matricielle . . . . .	18
2.1.4	Les vitesses des ondes élastiques . . . . .	19
2.2	Mode de propagation d'une fissure : l'idée de Griffith . . . . .	21
2.3	Endommagement, description et modélisation . . . . .	22
2.3.1	Méthode de l'approximation de Non Interaction (NIA) . . . . .	22
2.3.2	Effet d'une fissure . . . . .	24
2.3.3	Effet d'une population de fissures . . . . .	25
2.3.4	Écriture du tenseur de souplesse . . . . .	27
2.3.5	Lien entre souplesse, rigidité et densité de fissure . . . . .	29

---

<b>3</b>	<b>Dispositifs expérimentaux et Méthodologie</b>	<b>31</b>
3.1	La presse triaxiale . . . . .	31
3.1.1	Ses caractéristiques . . . . .	31
3.1.2	Les différents protocoles . . . . .	33
3.1.3	La chambre de confinement . . . . .	35
3.2	Les mesures et capteurs . . . . .	35
3.2.1	Les déformations, axiale et volumique . . . . .	35
3.2.2	La perméabilité . . . . .	39
3.2.3	Les ondes élastiques et les capteurs piézoélectriques . . . . .	40
<b>4</b>	<b>Le matériau</b>	<b>45</b>
4.1	Les échantillons . . . . .	45
4.2	Comportement du verre sain . . . . .	47
4.2.1	Comportement mécanique . . . . .	48
4.2.2	Paramètres élastiques dynamiques et endommagement . . . . .	49
4.2.3	Enveloppe et modes de rupture . . . . .	51

---

L'OBJECTIF de cette partie est de présenter les bases que nous utiliserons tout au long de cette étude. Nous prenons en compte ici les bases théoriques mais également les méthodes expérimentales utilisées.

Nous rappelons d'abord, les travaux théoriques dans le domaine de la mécanique qui ont servi dans cette étude à décrire le comportement et l'endommagement du verre : principe de l'élasticité et notion d'endommagement. Nous nous intéressons en particulier au paramètre qui permet de suivre l'évolution de l'endommagement : la "densité de fissure". Le modèle présenté servira par la suite, pour décrire l'évolution des échantillons de verre fissuré.

Le second chapitre décrit les méthodes expérimentales utilisée : le dispositif expérimental avec la cellule triaxiale du Laboratoire de Géologie de l'École Normale Supérieure, puis les mesures réalisées et les protocoles considérés.

Le troisième chapitre précise le matériau utilisé : le verre du CEA. Pour ce dernier point, nous décrirons le verre non fissuré : son comportement, ses propriétés élastiques et son enveloppe de rupture. L'intérêt de cette partie est de faire la continuité avec la précédente étude sur le comportement mécanique du verre [Ougier-Simonin, 2010].

## 2.1 Élasticité d'un matériau

### 2.1.1 Comportement élastique et Loi de Hooke

LORSQU'ON applique une force sur un solide, celui-ci est alors soumis à une contrainte qui peut le déformer. Cette déformation peut être réversible tant qu'elle ne dépasse pas une certaine limite. On reste alors dans le domaine des déformations élastiques. Dans ce domaine, Hooke observe en 1678 que la déformation est proportionnelle à l'amplitude de la contrainte. Il énonce alors la loi de relation contrainte/déformation ( $\sigma/\varepsilon$ ) en compression uniaxiale :

$$\sigma = E \varepsilon, \quad (1)$$

où  $E$  est une constante : le module de Young, une caractéristique intrinsèque du matériau, exprimée en GPa. Sous cette forme, on décrit les déformations dans une seule dimension. On généralise la loi de Hooke à trois dimensions :

$$\sigma_{ij} = C_{ijkl} \varepsilon_{kl} \quad \text{ou} \quad \varepsilon_{ij} = S_{ijkl} \sigma_{kl}, \quad (2)$$

où  $\mathbf{C}$  est le tenseur de rigidité du matériau (tenseur de rang 4<sup>(1)</sup>), et  $\mathbf{S}$ , son inverse, est le tenseur de souplesse du matériau.

### 2.1.2 Cas particuliers

DEUX symétries sont étudiées ici : la symétrie transverse isotrope et la symétrie isotrope.

(1). La notation en caractère gras,  $\mathbf{C}$ , fait référence au tenseur, tandis que la notation indicielle,  $C_{ijkl}$ , correspond au composant du tenseur. Les indices  $ijkl$  correspondent à l'orientation à considérer.

De façon générale, pour des raisons de symétrie de la contrainte ( $\sigma_{ij} = \sigma_{ji}$ ) et de la déformation ( $\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ji}$ ), le nombre de coefficients indépendants des tenseurs de rigidité et de souplesse est réduit à 21. En effet ces tenseurs satisfont les relations de symétrie majeure,  $C_{ijkl} = C_{klij}$  et mineures,  $C_{ijkl} = C_{jikl} = C_{jilk}$ .

### Symétrie transverse isotrope (TI)

Il est possible, en considérant les symétries particulières des roches de simplifier davantage ces tenseurs. Dans le cas des roches orthotropes (la roche présente deux plans de symétrie et les propriétés de ce matériau sont invariantes suivant les directions de projections orthogonales aux deux plans), on obtient les relations suivantes dues aux axes de symétrie :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_{1123} = C_{1113} = C_{1112} = 0, \\ C_{2223} = C_{2213} = C_{2212} = 0, \\ C_{3323} = C_{3313} = C_{3312} = 0, \\ C_{2313} = C_{2312} = C_{1312} = 0. \end{array} \right. \quad (3)$$

Le cas d'un matériau TI réduit encore le nombre de coefficients indépendants puisqu'un tel matériau est orthotrope, et possède en plus, un axe de rotation. Les tenseurs de rigidité et de souplesse ne sont alors décrits que par cinq composants indépendants. En effet, on a, en TI, les relations suivantes :

$$\left\{ \begin{array}{l} C_{1111} = C_{2222}, \\ C_{1133} = C_{2233}, \\ C_{1122} = C_{1111} - 2C_{1212}, \\ C_{2323} = C_{1313}. \end{array} \right. \quad (4)$$

Il a été montré dans plusieurs travaux précédents que pour les roches anisotropes, la symétrie TI décrit bien leur comportement [Lockner and Byerlee, 1977; Thomsen, 1986; Schubnel et al., 2006; Sarout and Gueguen, 2008; Louis et al., 2012].

### Symétrie isotrope

Dans un cas encore plus simple, considérant que les propriétés du matériau sont invariantes quelque soit l'axe considéré, la symétrie est dite isotrope. La symétrie des tenseurs est alors complète et invariante par toutes rotations autour des axes de tous repères ortho-normaux. Il ne reste alors plus que deux modules indépendants dans le tenseur de rigidité :  $G$  (le module de cisaillement exprimé en GPa) et  $K$  (le module d'incompressibilité volu-

mique exprimé en GPa). L'écriture du tenseur de rigidité,  $\mathbf{C}$ , est simplifiée par les relations suivantes :

$$\begin{cases} C_{11} = C_{33} = K + \frac{4}{3}G, \\ C_{13} = K - \frac{2}{3}G, \\ C_{44} = C_{66} = G. \end{cases} \quad (5)$$

### 2.1.3 Notation tensorielle et matricielle

Du fait des propriétés de symétrie, la notation matricielle des tenseurs  $\mathbf{C}$  et  $\mathbf{S}$  est plus fréquente. En effet, les précédentes simplifications nous permettent d'écrire ces tenseurs sous forme matricielle avec un simple indice allant de 1 à 6 selon la convention indicielle de Voigt (établie en 1910). Cette notation permet d'écrire les tenseurs de contrainte et de déformation sous la forme :

$$\begin{aligned} \begin{bmatrix} \sigma_{11} & \sigma_{12} & \sigma_{13} \\ \sigma_{12} & \sigma_{22} & \sigma_{23} \\ \sigma_{13} & \sigma_{23} & \sigma_{33} \end{bmatrix} &\rightarrow \begin{bmatrix} \sigma_1 & \sigma_6 & \sigma_5 \\ \sigma_6 & \sigma_2 & \sigma_4 \\ \sigma_5 & \sigma_4 & \sigma_3 \end{bmatrix} \\ \begin{bmatrix} \varepsilon_{11} & \varepsilon_{12} & \varepsilon_{13} \\ \varepsilon_{12} & \varepsilon_{22} & \varepsilon_{23} \\ \varepsilon_{13} & \varepsilon_{23} & \varepsilon_{33} \end{bmatrix} &\rightarrow \begin{bmatrix} \varepsilon_1 & \varepsilon_6 & \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 & \varepsilon_2 & \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 & \varepsilon_4 & \varepsilon_3 \end{bmatrix} \end{aligned} \quad (6)$$

De la même façon, dans les tenseurs  $\mathbf{C}$  et  $\mathbf{S}$  les deux premiers indices sont abrégés en un seul allant toujours de 1 à 6 et de même pour les deux seconds, le tout selon le schéma :

$$\begin{array}{ll} \text{notation tensorielle} & 11 \quad 22 \quad 33 \quad 23, 32 \quad 31, 13 \quad 12, 21 \\ \text{notation matricielle} & 1 \quad 2 \quad 3 \quad 4 \quad 5 \quad 6 \end{array} \quad (7)$$

On trouve une explication plus détaillée de cette transformation d'écriture dans l'étude de Nye [1985] qui traite des propriétés physiques des cristaux. L'équation (2), en TI, devient alors :

$$\begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} C_{11} & C_{11} - 2C_{66} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{11} - 2C_{66} & C_{11} & C_{13} & 0 & 0 & 0 \\ C_{13} & C_{13} & C_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 2C_{44} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 2C_{44} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 2C_{66} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix},$$

$$\begin{pmatrix} \varepsilon_1 \\ \varepsilon_2 \\ \varepsilon_3 \\ \varepsilon_4 \\ \varepsilon_5 \\ \varepsilon_6 \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{11} - \frac{S_{66}}{2} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{11} - \frac{S_{66}}{2} & S_{11} & S_{13} & 0 & 0 & 0 \\ S_{13} & S_{13} & S_{33} & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & \frac{S_{44}}{2} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{S_{44}}{2} & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \frac{S_{66}}{2} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \sigma_1 \\ \sigma_2 \\ \sigma_3 \\ \sigma_4 \\ \sigma_5 \\ \sigma_6 \end{pmatrix}. \quad (8)$$

Les facteurs 2 et 1/2 lié à  $C_{44}$ ,  $C_{66}$  et  $S_{44}$ ,  $S_{66}$ , permettent de conserver une écriture équivalente entre les tenseurs. Ils sont obtenus selon le schéma :

$$\begin{aligned} S_{ijkl} &= S_{IJ} \text{ quand I et J sont 1, 2 ou 3.} & C_{ijkl} &= C_{IJ} \text{ quand I et J sont 1, 2 ou 3.} \\ 2S_{ijkl} &= S_{IJ} \text{ quand I et J sont 4, 5 ou 6.} & C_{ijkl} &= 2C_{IJ} \text{ quand I et J sont 4, 5 ou 6.} \end{aligned}$$

### 2.1.4 Les vitesses des ondes élastiques

DE façon générale, la vitesse des ondes élastiques est très sensible à la structure du matériau traversé. On utilise alors, la description des ondes élastiques pour suivre les propriétés du matériau. Les vitesses des ondes élastiques vont permettre d'obtenir les coefficients du tenseur de rigidité (et de souplesse), et de suivre leur évolution au cours d'une expérience.

Dans le cas d'une symétrie isotrope les modules  $G$  et  $K$  sont reliés aux vitesses des ondes P et S par les relations suivantes :

$$V_P = \sqrt{\frac{K + \frac{4}{3}G}{\rho}} \quad V_S = \sqrt{\frac{G}{\rho}}. \quad (9)$$

où  $\rho$  est la densité du verre ( $\rho = 2839 \pm 10 \text{ kg/m}^3$ ).

Dans le cas TI, les cinq modules élastiques indépendants sont reliés aux vitesses des ondes élastiques (relations explicitées par Lo et al. [1986]; Liao et al. [1997]; Hornby [1998]) par :

$$\begin{aligned} C_{11} &= \rho V_P^2(0^\circ), & C_{33} &= \rho V_P^2(90^\circ), \\ C_{44} &= \rho V_{SV}^2(90^\circ), & C_{66} &= \rho V_{SH}^2(90^\circ), \end{aligned} \quad (10)$$

$$C_{13} = -C_{44} + \sqrt{(C_{11} + C_{44} - 2\rho V_P^2(45^\circ))(C_{33} + C_{44} - 2\rho V_P^2(45^\circ))},$$

où  $V_P(0^\circ)$  et  $V_P(90^\circ)$  sont les vitesses des ondes de compression se propageant verticalement et horizontalement (respectivement  $V_{11}$  et  $V_{33}$  en notation indicielle);  $V_P(45^\circ)$  est l'onde quasi-compressionnelle se propageant à  $45^\circ$ ;  $V_{SH}(90^\circ)$  et  $V_{SV}(90^\circ)$  sont les vitesses des ondes

de cisaillement se propageant horizontalement avec une polarisation horizontale et verticale (respectivement  $V_{12}$  et  $V_{13}$  en notation indicielle) [Sayers and Kachanov, 1995]. Ces axes sont représentés sur le schéma de la Figure 7.

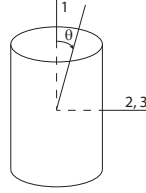


FIGURE 7 – **Axes de symétrie de la géométrie TI.** L'axe vertical correspondant à l'axe de symétrie des échantillons cylindriques est le 1 tandis que l'axe horizontal est le 3.

Expérimentalement, l'arrangement particulier des capteurs piézo-électriques permet d'obtenir la mesure de toutes ces vitesses. Notons que 6 vitesses seront enregistrées. La mesure supplémentaire ( $V_P(30^\circ)$ ) est une sécurité dans le cas où une autre mesure serait inexploitable. On peut ensuite trouver le  $C_{IJ}$  manquant par une équation plus complexe et qui est détaillée dans l'étude de Mavko et al. [2003] :

$$2\rho V_P^2(\theta) = C_{11} \sin^2 \theta + C_{33} \cos^2 \theta + C_{44} + \sqrt{M}, \quad (11)$$

avec

$$M = [(C_{11} - C_{44}) \sin^2 \theta - (C_{33} - C_{44}) \cos^2 \theta]^2 + (C_{13} + C_{44})^2 \sin^2 2\theta. \quad (12)$$

**En aparté : les paramètres de Thomsen : description de l'anisotropie des roches.** En 1986, Thomsen introduit 3 paramètres sans dimensions pour quantifier l'anisotropie élastique à partir des cinq modules élastiques décrits plus haut, en TI :

$$\begin{aligned} \varepsilon &= \frac{C_{11} - C_{33}}{2C_{33}}, & \gamma &= \frac{C_{66} - C_{44}}{2C_{44}}, \\ \delta &= \frac{(C_{13} + C_{44})^2 - (C_{33} - C_{44})^2}{2C_{33}(C_{33} - C_{44})}. \end{aligned} \quad (13)$$

où l'anisotropie des ondes P et S sont quantifiées respectivement par  $\varepsilon$  et  $\gamma$ . Les paramètres  $\varepsilon$  et  $\delta$  sont sensibles à la présence de fluide dans les pores ou fissures de la roche.



## 2.2 Mode de propagation d'une fissure : l'idée de Griffith

DES observations expérimentales réalisées sur fibres de verre ont permis à Griffith de décrire en 1921, les relations entre contrainte et taille des fissures. Griffith comprend que les microfractures présentes dans un matériau concentrent les contraintes appliquées à l'ensemble du matériau. Cette concentration des contraintes en une zone fragilisée par la microfracture va forcer cette dernière à s'ouvrir et se propager afin de libérer l'énergie emmagasinée. Une telle propagation peut, si la contrainte à libérer est trop importante, amener à la rupture macroscopique du matériau.

Selon l'orientation de la fissure il a été montré [Lawn and Wilshaw, 1975], que la contrainte ressentie localement n'est pas la même et peut induire différents modes de propagation de la fissure. Le premier mode est un mode d'ouverture des fissures. Les deux autres modes sont des modes de cisaillement (Figure 8). Ceux-ci dépendent de nombreux paramètres comme la pression de confinement ou la forme de la fissure préexistante. Il a été montré par exemple que les fissures peuvent se propager en mode I à pression de confinement faible puis en mode II et III à mesure que les contraintes augmentent.

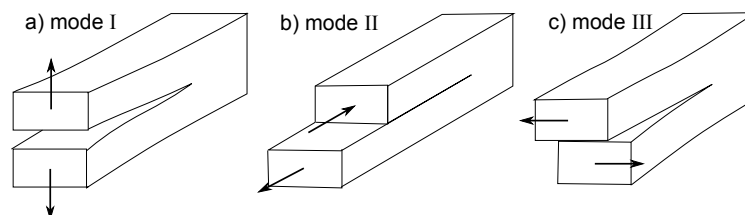


FIGURE 8 – Propagation d'une fissure selon trois modes.

Cette étude ne se situe pas à la même échelle que la notre. Ici, il s'agit de la propagation d'une unique fissure et non pas de l'endommagement de tout un réseau de fissure. Ce principe présenté ici ne prend pas en compte qu'avant la rupture macroscopique, les propriétés de rigidité du matériau peuvent se modifier du fait de l'endommagement par microfissuration. C'est d'ailleurs exactement ce qui est observé dans les études expérimentales d'endommagement de roches et ce quelque soit le moyen utilisé : enregistrement des émissions acoustiques, mesures de la déformation volumique, ou encore variations des vitesses des ondes élastiques [Ashby and Sammis, 1990; Chelidze, 1993; Main et al., 1993; Zang et al., 1996].

## 2.3 Endommagement, description et modélisation

Si on augmente les sollicitations, le mode de déformation change et passe du domaine élastique au domaine de la rupture en passant par un domaine où il y a de l'endommagement. Dans cette étape intermédiaire, des fissures apparaissent et se propagent. Nous cherchons à modéliser l'endommagement élastique dans un solide présentant une population de fissures. Ici, l'endommagement est vu comme une fissuration d'origine mécanique ou thermique. L'approche développée par Sayers and Kachanov [1995] puis précisée par Sayers [1999] permet d'obtenir les propriétés élastiques des matériaux fissurés par l'intermédiaire de la description des fissures à l'échelle microscopique.

Dans cette approche le solide est considéré comme constitué d'une matrice intacte, et de fissures. Cette approche micromécanique part en fait de l'échelle microscopique et de l'observation de la forme et de l'orientation des fissures pour remonter vers l'échelle macroscopique en moyennant les propriétés sur un volume élémentaire.

Nous rappelons que comme nous travaillons avec des verres endommagés, nous considérons une symétrie TI. En effet, cette symétrie est bien adaptée pour décrire la plus part des roches comme nous l'avons décrit plus haut, mais également le verre fissuré [Ougier-Simonin et al., 2011].

Les vitesses des ondes élastiques sont sensibles aux fissures du matériau qu'elles traversent. Ainsi on peut connaître les modules élastiques, mais on peut aussi remonter à l'évolution de l'endommagement du matériau par le suivi de l'évolution des vitesses.

### 2.3.1 Méthode de l'approximation de Non Interaction (NIA)

La méthode introduite par Kachanov [1993], pour modéliser les propriétés élastiques d'un matériau endommagé suit l'approximation de non interaction des fissures. Cette méthode peut se résumer en deux points :

- Dans un premier temps, on considère un Volume Élémentaire Représentatif (VER) constitué d'une seule fissure. Les tenseurs de souplesse et de rigidité sont alors décomposés en deux parties. La première décrit les propriétés intrinsèques du matériau ( $\mathbf{S}^0$  et  $\mathbf{C}^0$ ). Dans notre cas, il s'agit du verre sain. la seconde partie représente la contribution de la fissure ( $\Delta\mathbf{S}$  et  $\Delta\mathbf{C}$ ). Ces tenseurs sont structurellement induits et représentent la variation de  $\mathbf{S}^0$  et  $\mathbf{C}^0$  sous chargement mécanique.

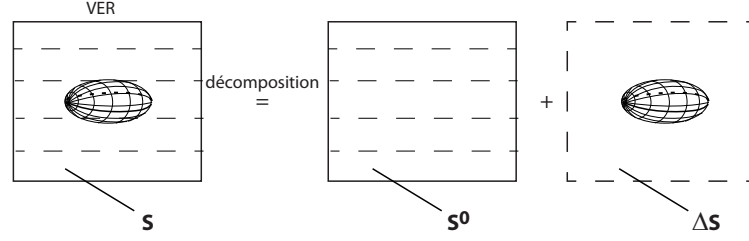


FIGURE 9 – Principe de la décomposition d'un VER.

- La seconde étape de cette méthode est de généraliser l'approche à l'ensemble du réseau de fissure par le biais de l'hypothèse de NIA. Avec cette approximation on suppose que les fissures n'interagissent pas. Ainsi, le tenseur du matériau complet est représenté par  $\mathbf{S}^0 + N\Delta\mathbf{S}$  ou  $\mathbf{C}^0 + N\Delta\mathbf{C}$ , où  $N$  représente le nombre de fissure.

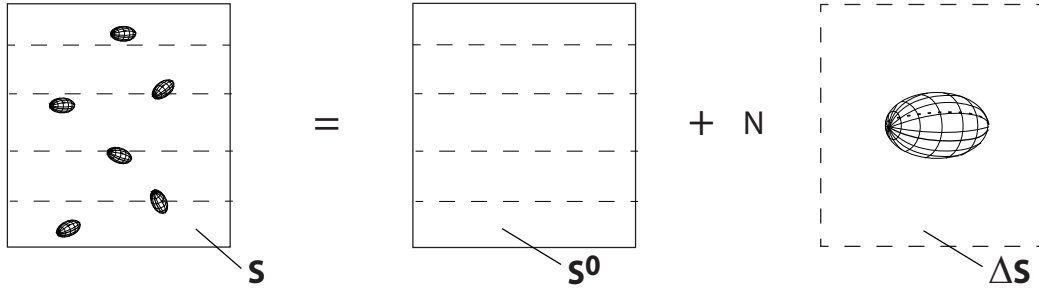


FIGURE 10 – Principe de l'hypothèse de NIA.

Les études de Sayers and Kachanov [1995] et Schubnel et al. [2006] montrent que cette approximation simple est très satisfaisante, à faible densité de fissure ( $<0,18$ ). En effet, les effets des fissures peuvent alors se compenser très largement et l'interaction moyenne est faible. Ainsi, les effets de concentration et d'amplification dus aux extrémités des fissures et les effets dus aux champs de contrainte de part et d'autre des fissures se neutralisent lorsque les fissures sont réparties aléatoirement. Ceci suppose une homogénéité de la répartition des fissures dans les échantillons.

On peut alors réécrire la loi de Hooke, pour un réseau de fissures homogène connu, tel que :

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}^0 + \Delta\varepsilon_{ij} = (S_{ijkl}^0 + \Delta S_{ijkl})\sigma_{kl}. \quad (14)$$

de la même façon que pour les tenseurs  $\mathbf{C}$  et  $\mathbf{S}$ ,  $\varepsilon^0$  représente la déformation moyenne du milieu sans fissure et  $\Delta\varepsilon$  la déformation additionnelle due aux fissures.

Pour pouvoir décrire l'endommagement dans notre modèle, et essayer d'en prédire son évolution sous contrainte, on va décrire les fissures dans un premier temps, avant de les replacer dans la matrice intacte et de modéliser leur présence.

### 2.3.2 Effet d'une fissure

On se place dans l'hypothèse où l'on considère qu'un VER contient une seule fissure. En trois dimensions, les fissures peuvent être simplement représentées par des ellipsoïdes [Schoenberg, 1980; Sayers and Kachanov, 1995]. On définit alors une ouverture,  $w$  et un rayon,  $a$  :

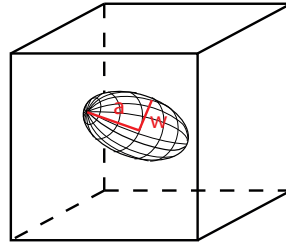


FIGURE 11 – Schéma d'une inhomogénéité de forme ellipsoïdale.

Le facteur de forme d'une fissure ( $\xi = \frac{w}{a}$ ) varie de 0 à 1. Quand il est proche de 1 on a à faire à une inhomogénéité de la forme d'un pore et quand on s'approche de 0 on obtient une fissure.

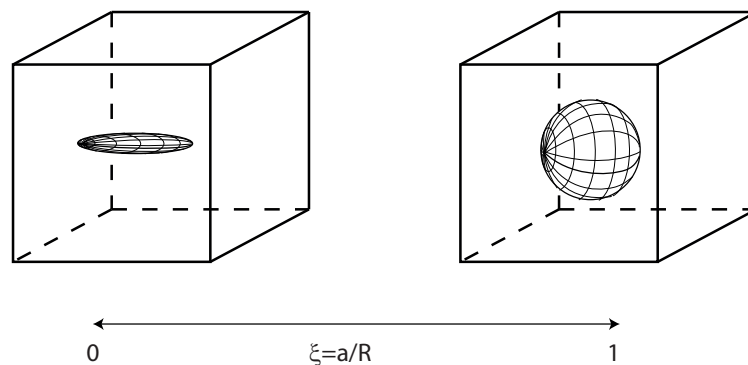


FIGURE 12 – Évolution des inhomogénéités en fonction de leur facteur de forme.

D'après l'étude de Kachanov [1980], il existe une relation mécanique simple entre la discontinuité de déplacement  $[u_i]$  et le champ de contrainte, à travers un tenseur  $\mathbf{B}$  caractérisant cette discontinuité :

$$[u_i] = B_{ij}\sigma_{jk}n_k. \quad (15)$$

Dans cette écriture, la fissure est considérée comme étant plane. En fait, elle n'est plus une ellipsoïde mais a une forme de type "peny-shape" dont  $\underline{n}^{(2)}$  est son vecteur normal.

---

(2). Le symbole  $n$  souligné dans le texte,  $\underline{n}$ , est une notation qui indique que l'on fait référence à un vecteur.

Si une telle discontinuité est placée dans un solide sous contrainte, le déplacement  $[u_i]$  va introduire une déformation supplémentaire que l'on peut alors écrire :

$$\Delta\varepsilon_{ij} = \frac{1}{2V} \int_S (u_i n_j + n_i u_j) dS. \quad (16)$$

Si on suppose que la fissure est plane, on peut considérer que le vecteur normal,  $\underline{n}$ , est constant. On peut alors s'affranchir de cette intégrale et ainsi obtenir :

$$\Delta\varepsilon_{ij} = \frac{S}{2V} (B_{ij} n_j + n_i B_{ji}), \quad (17)$$

où  $S$  représente la surface de la fissure considérée et où le tenseur  $\mathbf{B}$  est lié à la description du déplacement  $[u_i]$ .

### 2.3.3 Effet d'une population de fissures

#### Cas isotrope

DANS le cas d'une population de fissures, afin de remonter à l'échelle macroscopique, les études réalisées par Sayers and Kachanov [1995] et Schubnel et al. [2006] montrent que l'on peut considérer que les effets de plusieurs fissures s'obtiennent par addition selon le schéma dit NIA. On introduit alors un paramètre d'endommagement : la densité de fissure, notée  $\rho_c$  :

$$\rho_c = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N a^{(m)3}, \quad (18)$$

avec  $a^{(m)}$  qui représente le rayon de la  $m^{eme}$  fissure et  $N$ , le nombre total de fissures. Ce paramètre fut défini par Bristow [1960] et précisé par Walsh [1965a,b]. Il fut ensuite généralisé aux fissures elliptiques planes par Budiansky and O'Connell [1976]. D'un point de vue plus physique, ce paramètre représente le rapport entre le volume d'influence des fissures et le volume total considéré.

En isotrope, la densité de fissure peut être reliée aux modules élastiques  $K$  et  $G$  par les relations suivantes :

$$\frac{K_0}{K} = 1 + \frac{\rho_c}{1-2\nu_0} H\left(1 - \frac{\nu_0}{2}\right) \quad (19)$$

$$\frac{G_0}{G} = 1 + \frac{\rho_c}{1+\nu_0} H\left(1 - \frac{\nu_0}{5}\right)$$

avec,

$$H = \frac{16(1 - \nu_0^2)}{9(1 - \frac{\nu_0}{2})} \quad (20)$$

où le coefficient  $\nu_0$ , coefficient de Poisson, décrit le comportement des déformations d'un matériau. Il est le rapport entre déformation radiale et axiale.

### Cas TI

LE paramètre isotrope de densité de fissure,  $\rho_c$  est un scalaire et est bien adapté aux matériaux isotropes. Il a été étendu aux systèmes anisotropes via les travaux de Kachanov [1980] qui introduit deux nouveaux tenseurs. Le premier est un tenseur d'ordre 2 :

$$\alpha = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N (a^3_{nn})^{(m)} \quad (21)$$

où  $\underline{n}$  est la normale à la  $m^{eme}$  fissure. Le second tenseur est un tenseur d'ordre 4 :

$$\beta = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N (a^3_{nnnn})^{(m)} \quad (22)$$

Ces deux tenseurs ont chacun une amplitude en  $\frac{a^3}{V}$  et se rapprochent donc de la densité de fissure. La différence avec  $\rho_c$  vient du fait que ce sont des tenseurs et qu'ils apportent donc plus de précision quant à l'orientation de ce paramètre d'endommagement. En effet le tenseur d'ordre 2,  $\alpha$ , apporte une précision sur l'orientation des fissures. Quand on le diagonalise, on remarque que ses trois composants principaux sont les trois densités de fissure dans les trois directions principales. De même pour le tenseur d'ordre 4,  $\beta$ , qui apporte encore plus de précision sur la distribution des fissures. En fait, on pourrait approcher ces deux tenseurs comme étant un développement limité :  $\beta$  serait un développement limité de précision supérieur à  $\alpha$ , lui même de précision supérieure au scalaire  $\rho_c$ .

On note, que si on ne considère que la précision en  $\alpha$ , il est possible de remonter à la symétrie isotrope. En effet,  $\rho_c = Tr(\alpha)$ .

Ainsi avec une population de fissures, les déformations deviennent, à partir de l'équation (16) et si on considère N fissures dans le volume total :

$$\Delta \varepsilon_{ij} = \frac{1}{2V} \sum_{m=1}^N \int_{S^m} (u_i n_j + u_j n_i)^{(m)} dS. \quad (23)$$

Remontons à l'échelle macroscopique, les déplacements globaux du solide élastique peuvent être représentés comme la somme des déplacements de la matrice intacte et des déplacements “supplémentaires” dus à la présence des inhomogénéités.

$$\varepsilon_{ij} = S_{ijkl}^0 \sigma_{kl} + \Delta \varepsilon_{ij} \quad (24)$$

Ce que l'on cherche à déterminer est cette souplesse “supplémentaire”,  $\Delta \mathbf{S}$  telle que :

$$\Delta \varepsilon_{ij} = \Delta S_{ijkl} \sigma_{kl} . \quad (25)$$

**En aparté : discussion sur le choix du nom du paramètre d'endommagement.**

Le terme “densité de fissure” fut introduit par Budiansky and O'Connell [1976]. Walsh [1965a,b] n'avait fixé que la définition de ce paramètre d'endommagement. Le nom donné à ce paramètre peut être trompeur. Ce paramètre,  $\rho_c$  est le rapport entre le volume “d'influence” des fissures et le volume total de l'échantillon. Il n'est pas le volume des fissures normalisé mais leur volume d'influence normalisé. C'est ce qui caractérise le comportement mécanique d'un matériau.

Le choix de ce paramètre d'endommagement n'est pas remis en cause ici, mais simplement son nom. Une appellation comme “densité d'influence des fissures” serait peut-être moins trompeur, bien qu'ayant une sémantique moins simple à utiliser.

Dans la suite de ce manuscrit l'appellation de “densité de fissure” sera conservée tout en gardant bien à l'esprit le sens exact de ce paramètre.

### 2.3.4 Écriture du tenseur de souplesse

LA souplesse “supplémentaire”,  $\Delta \mathbf{S}$ , due à la présence des discontinuités est obtenue par les équations (23) et (25) :

$$\Delta S_{ijkl} \sigma_{kl} = \frac{1}{2V} \sum_{m=1}^N \int_{S^m} (u_i n_j + u_j n_i) dS . \quad (26)$$

Le tenseur  $\mathbf{B}$  peut se décomposer en une partie normale et une autre tangentielle,  $B_{ij} = B_N n_i n_j + B_T (\delta_{ij} - n_i n_j)$ , on obtient, connaissant l'écriture de  $[u_i]$  à partir des contraintes :

$$\Delta S_{ijkl} \sigma_{kl} = \frac{1}{2V} \sum_{m=1}^N [B_T (\sigma_{iq} n_q n_j + \sigma_{jq} n_q n_i) + 2(B_N - B_T) \sigma_{pq} n_i n_j n_p n_q]^{(m)} S^m. \quad (27)$$

Afin d'obtenir uniquement le tenseur de souplesse additionnel, on considère une contrainte test qui peut s'écrire sous la forme :  $\sigma_{ij} = \frac{\sigma}{2} (\delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_{jk} \delta_{il})$ . Ce qui nous donne au final une expression générale de  $\Delta \mathbf{S}$  :

$$\Delta S_{ijkl} = \frac{1}{V} \sum_{m=1}^N \left[ \frac{B_T}{4} (\delta_{ik} n_j n_l + \delta_{il} n_j n_k + \delta_{jk} n_i n_l + \delta_{jl} n_i n_k) + (B_N - B_T) n_i n_j n_k n_l \right]^{(m)} S^m. \quad (28)$$

Dans le cas d'une matrice isotrope (cas du verre), pour une fissure assimilable à un disque de rayon  $a$ ,  $\mathbf{B}_N$  et  $\mathbf{B}_T$  sont connus [Guéguen and Kachanov, 2011] :

$$B_T = \frac{32(1 - \nu_0^2)a}{3\pi(2 - \nu_0)E_0}, \quad \frac{B_N}{B_T} = \left(1 - \frac{\nu_0}{2}\right) \frac{\delta_f}{1 + \delta_f}, \quad (29)$$

où  $E_0$  et  $\nu_0$  sont le module de Young et le coefficient de Poisson du verre ;  $a$  est le rayon de la fissure-disque. On notera pour simplifier,

$$h = \frac{32(1 - \nu_0^2)}{3(2 - \nu_0)E_0}. \quad (30)$$

Le paramètre  $\delta_f$  est un paramètre qui intervient dans le cas de fissures saturées en fluide. Il caractérise le couplage qu'il y a entre la contrainte et la pression de pore, déterminant ainsi l'impact du fluide sur la rigidité des fissures (Schubnel and Guéguen 2003).

$$\delta_f = \frac{\pi \xi E_0}{4(1 - \nu_0^2)} \left( \frac{1}{K_f} - \frac{1}{K_0} \right) \quad (31)$$

où  $K_f$  est le module d'incompressibilité du fluide. On remarque que cette écriture correspond aussi très bien aux matériaux secs puisque dans ce cas, le fluide en question est de l'air, et  $K_f=0$ . Le paramètre  $\delta_f$  devient infini et le terme  $\delta_f/(1+\delta_f)$  devient alors égal à 1.

Donc, avec les écritures de  $\mathbf{B}_N$  et  $\mathbf{B}_T$  ainsi que les deux tenseurs définis plus haut,  $\alpha$  et  $\beta$ , on obtient une écriture simplifiée de  $\Delta \mathbf{S}$  qui est :

$$\Delta S_{ijkl} = h \left\{ \frac{1}{4} (\delta_{ik} \alpha_{jl} + \delta_{il} \alpha_{jk} + \delta_{jk} \alpha_{il} + \delta_{jl} \alpha_{ik}) - \left[ 1 - \left(1 - \frac{\nu_0}{2}\right) \frac{\delta_f}{1 + \delta_f} \right] \beta_{ijkl} \right\}. \quad (32)$$



Dans le cas TI, on peut écrire les cinq composants du tenseur  $\Delta \mathbf{S}$  [Guéguen and Kachanov, 2011] :

$$\begin{cases} \Delta S_{1111} = h(\alpha_{11} - \psi\beta_{1111}) \\ \Delta S_{3333} = h(\alpha_{33} - \psi\beta_{3333}) \\ \Delta S_{1133} = -h\psi\beta_{1133} \\ \Delta S_{2323} = h(\frac{1}{4}(\alpha_{11} + \alpha_{33}) - \psi\beta_{1133}) \\ \Delta S_{1212} = h(\frac{1}{2}\alpha_{11} - \frac{1}{3}\psi\beta_{1111}) \end{cases}, \quad (33)$$

où,

$$\psi = 1 - (1 - \frac{\nu_0}{2}) \frac{\delta_f}{1 + \delta_f}. \quad (34)$$

On trouve alors le tenseur de souplesse complet :

$$\begin{cases} S_{1111} = \frac{1}{E_0} + h(\alpha_{11} - \psi\beta_{1111}) \\ S_{3333} = \frac{1}{E_0} + h(\alpha_{33} - \psi\beta_{3333}) \\ S_{1133} = -\frac{\nu_0}{E_0} - h\psi\beta_{1133} \\ S_{2323} = \frac{1+\nu_0}{2E_0} + h(\frac{1}{4}(\alpha_{11} + \alpha_{33}) - \psi\beta_{1133}) \\ S_{1212} = \frac{1+\nu_0}{2E_0} + h(\frac{1}{2}\alpha_{11} - \frac{1}{3}\psi\beta_{1111}) \end{cases}. \quad (35)$$

### 2.3.5 Lien entre souplesse, rigidité et densité de fissure

**E**XPÉRIMENTALEMENT on mesure les vitesses des ondes élastiques. Celles-ci nous donnent les valeurs des composants du tenseur de rigidité. Si on veut par ce modèle d'endommagement, remonter à la densité de fissure il nous faut inverser  $\mathbf{C}$  pour obtenir  $\mathbf{S}$  et ainsi obtenir les composantes de  $\alpha$  et  $\beta$ .

On trouve alors les relations suivantes entre les composants du tenseur de rigidité et de souplesse :

$$C_{1111} = \frac{S_{3333}}{2S}, \quad C_{3333} = \frac{2S_{1111} - 1/2S_{1212}}{S}, \quad C_{1133} = -\frac{S_{1133}}{S}, \quad (36)$$

$$C_{2323} = \frac{1}{S_{2323}}, \quad C_{1212} = \frac{1}{S_{1212}}.$$

avec

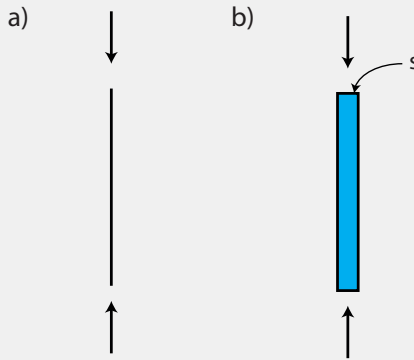
$$S = S_{3333}(2S_{1111} - \frac{1}{2}S_{1212}) - 2S_{1133} \quad (37)$$

Connaissant  $\mathbf{C}$  et  $\mathbf{S}$  à partir des mesures de vitesses, on inverse l'équation (35) et on trouve la densité de fissure en TI décrite, composants par composants, par :

$$\begin{cases} \alpha_{11} = \frac{1}{h} \left( S_{1111} - S_{1133} - \frac{1+\nu_0}{E_0} \right) \\ \alpha_{33} = \frac{1}{h} \left( 4S_{2323} - 3S_{1133} - S_{1111} - \frac{3+7\nu_0}{E_0} \right) \\ \beta_{1111} = -\frac{3}{5h\psi} \left( \frac{\nu_0}{E_0} - 2S_{1212} + S_{1111} \right) \\ \beta_{3333} = -\frac{1}{h\psi} \left( S_{3333} - 4S_{2323} + 3S_{1133} + S_{1111} + \frac{2+7\nu_0}{E_0} \right) \\ \beta_{1133} = -\frac{1}{h\psi} \left( S_{1133} + \frac{\nu_0}{E_0} \right) \end{cases} . \quad (38)$$

**En aparté : le tenseur  $\beta$  et le cas sec.** On considère souvent que lorsque le matériau est sec on peut négliger  $\beta$ . En effet dans ce cas,  $\psi$  tend vers  $\nu_0/2$  qui est de l'ordre de 0,1 alors que le terme devant  $\alpha$  dans l'équation 35 est de l'ordre de 1. En négligeant  $\beta$  on fait une erreur de 10% qui peut être acceptable en fonction de la précision voulue.

Dans cet aparté nous souhaitons préciser le sens physique de  $\beta$ , ayant remarqué qu'il est lié à  $\nu_0$ . Le tenseur  $\beta$  peut être considéré comme décrivant l'effet de Poisson. Pour comprendre cet effet, observons une fissure verticale soumise à un chargement axial. Deux cas sont alors possible, le cas sec où la fissure est fermée (a) et le cas saturé où la fissure présente une certaine ouverture due à la pression de fluide (b) :



(i) dans le cas sec (a), à l'horizontal, la fissure n'a pas de surface. Elle ne voit donc pas la contrainte axiale. Il n'y aura donc pas de déformation radiale. Cette observation confirme le fait que l'on peut négliger le tenseur  $\beta$  et l'effet de Poisson dans le cas d'un matériau sec.

(ii) dans le cas saturé en fluide (b), la fissure est ouverte et il y a alors une surface horizontale. La fissure voit donc la contrainte verticale appliquée et elle peut se déformer radialement. L'effet de Poisson n'est alors plus négligeable, ainsi que  $\beta$ .

## Dispositifs expérimentaux et Méthodologie

### 3.1 La presse triaxiale

#### 3.1.1 Ses caractéristiques

LA totalité des expériences en compression présentée dans ce mémoire, a été réalisée avec une presse triaxiale, installée au Laboratoire de Géologie de l'École Normale Supérieure. Cette presse (Figure 13) est utilisée pour réaliser des études de déformation sur les roches. L'intérêt de ces études est de pouvoir contrôler et faire varier indépendamment les contraintes, isotrope et déviatorique, ainsi que la température, mais également la pression de pore et la chimie du fluide interstitiel. On peut mesurer sur cette presse et de manière simultanée, la déformation de l'échantillon (locale et globale), les pressions appliquées (pression de confinement, contrainte déviatorique et pression de pore), ainsi que le taux d'émission acoustique et les vitesses des ondes élastiques à travers l'échantillon.

La pression de confinement, qui peut aller jusqu'à 100 MPa, est appliquée de manière uniforme sur toute la surface latérale de l'échantillon, grâce à une huile quasi-incompressible aux pressions atteintes. L'échantillon est isolé de cette huile de confinement grâce à une jaquette en néoprène. La contrainte déviatorique quant à elle est appliquée par un piston sur la base haute des échantillons. Elle peut varier indépendamment de la pression de confinement et peut aller jusqu'à 680 MPa (charge maximale de 70 tonnes, soit une contrainte de 680 MPa pour un échantillon de 40 mm de diamètre). Ainsi il ne s'agit pas d'une vraie presse triaxiale, mais plutôt d'une presse biaxiale de révolution avec  $\sigma_1 \geq \sigma_3 = \sigma_2$ . La pression de confinement et le chargement déviatorique sont générés par deux pompes extérieures indépendantes. Le contrôle de ces chargements est effectué par un automate programmable commandé par une interface dédiée (Falcon<sup>©</sup>) avec une précision de  $\Delta P = 0,01$  MPa. L'état de chargement est connu à tout instant. Deux procédures sont possibles : taux de déformation axial imposé ou bien taux de contrainte axiale imposé.

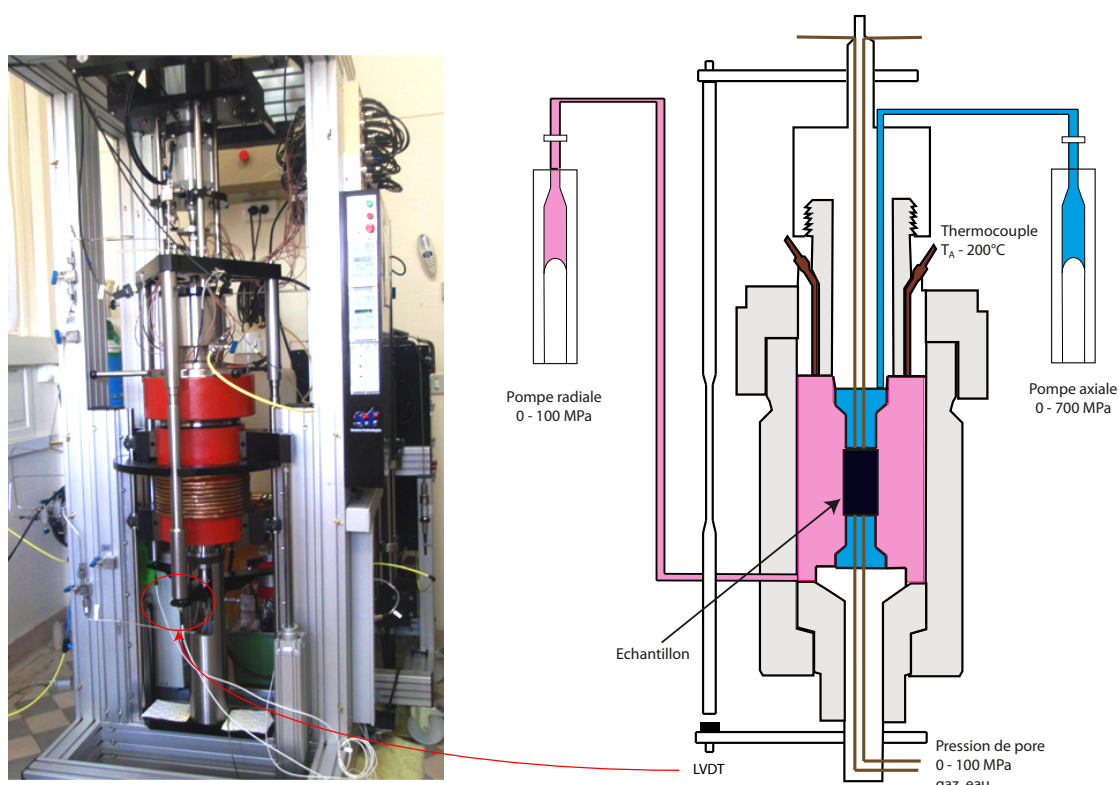


FIGURE 13 – **Presse triaxiale du Laboratoire de Géologie de l'ENS.** a) Photographie de l'installation. b) Schéma de principe de fonctionnement

La pression de pore est générée et régulée par deux pompes volumétriques qui permettent d'introduire un fluide (gazeux ou liquide) à chaque base du cylindre. Ce fluide est injecté sous pression contrôlée (de 0 à 100 MPa), dans l'espace poreux des matériaux étudiés. Ces deux pompes étant indépendantes, on peut appliquer une pression ou un débit différent à chacune des bases de l'échantillon. Les pompes volumétriques sont commandées par un procédé similaire à celui des pompes radiale et axiale de la presse (interface QuiziX<sup>®</sup>). Il est à noter que la presse a été conçue également pour introduire des fluides corrosifs dans le circuit de pore dans la limite de la corrosion des tubes du circuit.

Pour réaliser des études sur le comportement des échantillons sous contraintes thermo-mécaniques couplées, la salle de la presse est équipée d'un système de climatisation. Il permet une régulation de la température à  $\pm 0,5^\circ\text{C}$ . L'intérêt est de ne pas subir de problèmes liés aux variations de températures non contrôlées lors des essais. La salle d'expérimentation est régulée à  $T_A = 20^\circ\text{C}$ . La presse est aussi équipée d'un dispositif qui permet de créer un champ de température uniforme tout autour de l'échantillon (jusqu'à  $200^\circ\text{C}$  avec une précision de  $\pm 0,5^\circ\text{C}$ ).

### 3.1.2 Les différents protocoles

LA totalité des expériences réalisées ainsi que les échantillons utilisés pour toutes nos observations sont récapitulés en annexe A de ce manuscrit.

Pour les expériences réalisées dans la cellule triaxiale, nous allons décrire ici les protocoles expérimentaux considérés. A chaque fois, l'expérience commence avec son installation qui est la même quelque soit le type de test réalisé :

- l'échantillon est mis en place dans la cellule. Ensuite, la cellule est fermée et remplie d'huile.
- l'échantillon est ensuite mis en confinement : la pression radiale et la contrainte axiale sont augmentées de façon simultanée pour rester en condition hydrostatique.
- si besoin est, le fluide de pore est à ce moment là installé. La température peut également être mise en place. Afin d'obtenir une complète saturation du fluide et une température homogène jusqu'au cœur de l'échantillon, l'échantillon est laissé dans ces conditions pendant deux jours.

Après ce temps d'installation et de saturation, l'expérience peut commencer selon un des protocoles suivants.

#### Le test de rupture

LORS d'un essai classique de rupture d'un échantillon, la contrainte axiale est augmentée pour obtenir une différence entre contrainte de confinement ( $\sigma_3$ ) et contrainte axiale ( $\sigma_1$ ). Il en résulte une contrainte différentielle notée  $Q$  ( $= \sigma_1 - \sigma_3$ ). Cette contrainte est augmentée à vitesse de déformation constante. Le débit d'huile injecté par la pompe axiale dans le piston est de 25 cc. Ceci correspond à une vitesse de déformation de  $2.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ . La contrainte différentielle est ainsi augmentée jusqu'à la rupture de l'échantillon. À cet instant, la contrainte maximale atteinte correspond à la résistance maximale de l'échantillon et est notée  $Q_{max}$ .

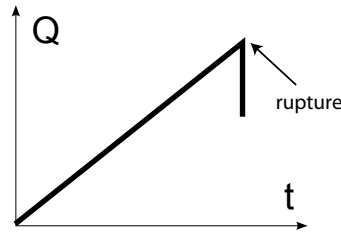


FIGURE 14 – **Protocole de rupture.** Évolution de la contrainte différentielle lors d’un test de rupture.

### Le test de fluage

DANS un tel test, l’objectif est d’observer l’évolution des déformations au cours du temps à contrainte constante. On suivra le protocole de “stress-stepping”, avec une succession de paliers à contrainte constante [Baud and Meredith, 1997; Heap et al., 2009b; Yang and Jiang, 2010; Heap et al., 2011]. Pour cela, la contrainte différentielle est augmentée (à 4 MPa/min) jusqu’à 80% de la valeur maximale tolérée par l’échantillon,  $Q_{max}$  (donnée obtenue par des tests de rupture). À 80% de  $Q_{max}$ , on stabilise la contrainte. Ce chargement est maintenu constant pendant 24 h. Si au bout de ces 24 h, le comportement de l’échantillon est devenu stable, la contrainte différentielle est augmentée de 10 MPa (soit  $\sim 3\%$  de  $Q_{max}$ ). Toutes les 24 h, le chargement est ainsi augmenté, jusqu’à obtenir la rupture de l’échantillon sous contrainte constante. On définit le temps à la rupture,  $\tau$  le temps entre le début du dernier palier et la rupture.

Le premier intérêt de ce protocole est d’enregistrer dans un temps suffisamment court, pour des expériences en laboratoire, la rupture sous chargement constant (rupture en fluage tertiaire). L’autre intérêt est d’observer les déformations lentes en fonction du temps et des différentes valeurs de contrainte.

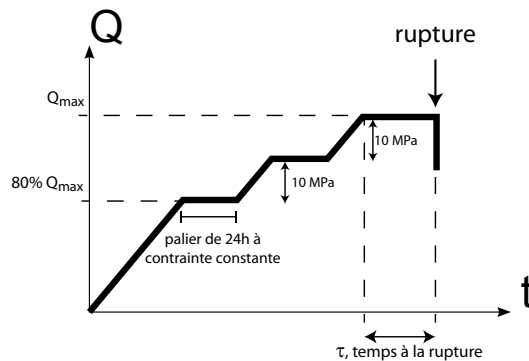


FIGURE 15 – **Protocole de fluage.** Évolution de la contrainte différentielle lors d’un test de fluage.

### 3.1.3 La chambre de confinement

LA chambre de confinement peut accueillir un échantillon de diamètre maximal 40 mm et de hauteur maximale 88 mm. Elle possède 16 passages étanches permettant l'adjonction de capteurs fixés directement sur l'échantillon ainsi que 16 connections simples dédiées à la mesure de la déformation. Ces divers branchements nous permettent de fixer plusieurs capteurs que nous allons maintenant préciser. Ces capteurs vont servir à suivre l'évolution des propriétés physiques des échantillons au cours d'un essai, indépendamment des paramètres de contrôles de la presse triaxiale (pression, contrainte et température). La Figure 16 montre une photo de la chambre de confinement ouverte avec un échantillon installé. On y voit des différents câbles qui sont liés aux branchements de la cellule.

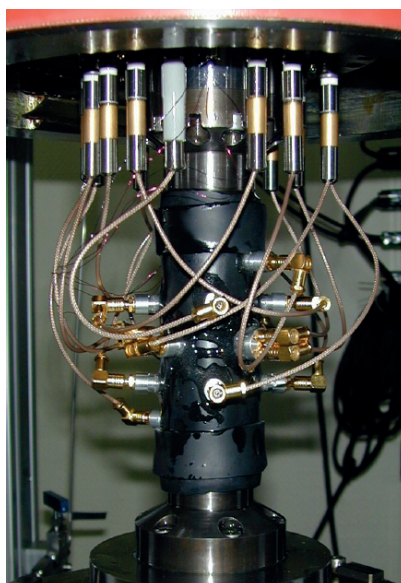


FIGURE 16 – Photographie de la chambre de confinement et d'un échantillon muni de capteurs.

## 3.2 Les mesures et capteurs

### 3.2.1 Les déformations, axiale et volumique

Mesures axiale et volumique locale : par les jauges de déformations

À la surface de l'échantillon, 4 paires de jauges de déformation de type Tokyosokki TML FCB<sup>©</sup> sont collées. Elles sont situées tout autour de l'échantillon en son centre. Ces jauges se présentent par paires (Figure 17). On a donc sur notre échantillon, réparties tout autour

du périmètre, 4 jauges axiales et 4 radiales. Les 16 connections simples dans la cellule de la presse permettent de brancher ces capteurs. Les signaux sont enregistrés par l'interface logicielle HBM Catman<sup>©</sup>.

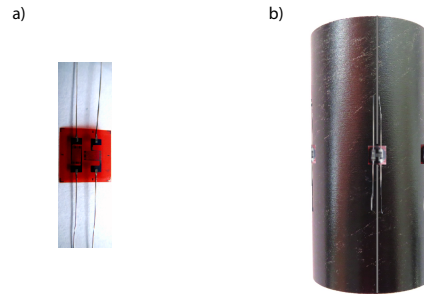


FIGURE 17 – Une paire de jauges de déformation (a) et sa disposition autour de l'échantillon (b).

Le principe de fonctionnement de ces jauges est basé sur le fait que certains matériaux voient leur conductibilité varier quand ils subissent une déformation. Ces variations sont amplifiées et mesurées au travers d'un pont de Wheatstone (de résistance  $120\ \Omega$  dans notre cas). Le pont de Wheatstone est un assemblage de 4 résistances qui présente une tension nulle à l'équilibre (la jauge est l'une des résistances du pont). Lorsque l'échantillon se déforme, la jauge subit une elongation ou raccourcissement. Du fait de sa déformation, sa conductivité varie. Ainsi, sa résistance, liée à sa longueur, varie également et la tension globale du pont de Wheatstone avec. Cette variation de tension est ensuite calibrée dans l'interface logicielle Catman<sup>©</sup> pour obtenir la variation de longueur des jauges et donc la déformation locale de l'échantillon.

Ces jauges nous permettent d'enregistrer les informations de la déformation axiale et radiale avec une précision de l'ordre du micromètre par mètre à une fréquence de 1 Hz ( $\delta t = 1\text{ s}$ ). On obtient alors la déformation axiale et radiale locale de l'échantillon. Considérant la symétrie TI,  $\varepsilon_{volumique} = \varepsilon_{axiale} + 2\ \varepsilon_{radiale}$  on a alors une mesure de la déformation volumique.

Les jauges de déformations nous indiquent la variation locale de l'échantillon. Du fait de la répartition de ces jauges, tout autour de l'échantillon, nous faisons l'hypothèse que l'on peut moyenner les données issues des 4 jauges pour obtenir la déformation globale de tout l'échantillon. Il est nécessaire de vérifier l'homogénéité des déformation. Pour cela des mesures globales sont également à prendre en compte.



### Mesure axiale globale : par les LVDT

**S**UR la presse sont installés trois capteurs LVDT (présent sur le schéma de la Figure 13). Ils nous permettent de mesurer les déformations axiales de l'échantillon. La différence avec les jauges est que ces capteurs mesurent uniquement la déformation axiale au travers du déplacement du piston. L'avantage de cette mesure est d'être globale à tout l'échantillon. Les jauges, en effet, présentent une grande précision mais ont l'inconvénient d'être des mesures en un point particulier. Les capteurs LVDT donnent la variation de tout l'échantillon et permettent de savoir si les variations mesurées par les jauges sont homogènes et moyennables sur tout l'échantillon ou non.

Ces capteurs sont des capteurs à courant de Foucault. En les corrigeant de la rigidité de la presse ( $E=80$  MPa), on en déduit la variation de longueur de l'échantillon.

En comparant jauges axiales et LVDT on a pleinement accès à la déformation axiale de l'échantillon : d'une part les jauges de déformation indiquent de façon précise mais locale cette déformation, tandis que la variation de l'allongement du piston nous donne une précision sur la déformation axiale globale de l'échantillon et nous permet de savoir si on peut bien moyenner les données des jauges.

La Figure 18 montre des déformations axiales obtenues lors d'un essai quelconque selon un protocole de rupture classique (il s'agit de l'expérience C4 qui sera présenté plus loin). On y voit les 4 mesures des 4 jauges de déformation axiale ainsi que la valeur moyenne (a) et la mesure obtenue par les LVDT (b).

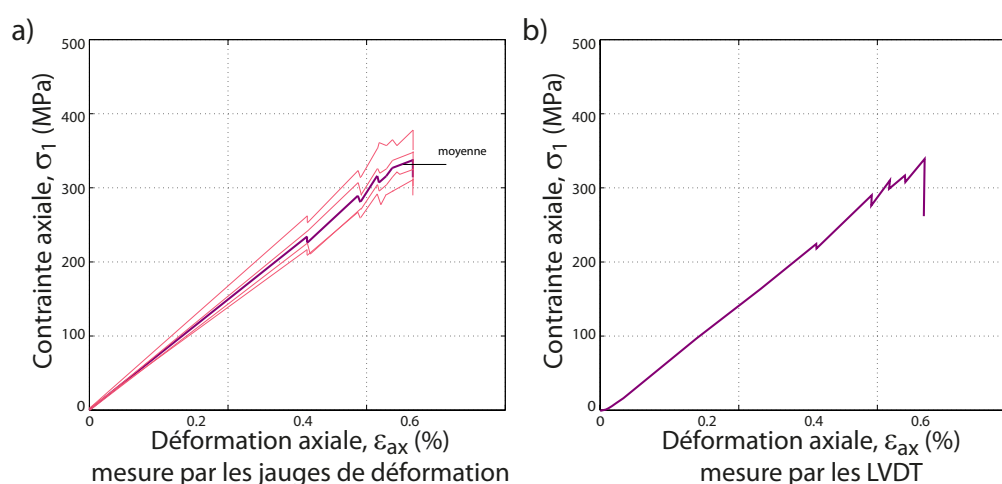


FIGURE 18 – **Comparaison des mesures de déformation axiale, issues des jauges axiales et des LVDT.** a) Les 4 jauges axiales et leur valeur moyenne. b) La mesure faite par les LVDT. (déformation en fonction de la contrainte axiale appliquée)

Dans la suite, du fait de la bonne corrélation des deux mesures, nous avons choisi de

ne présenter que les mesures de jauges moyennées car elles apportent une plus grande précision.

### Mesure volumique globale : par variation du volume de pore

EN condition drainée, c'est-à-dire, à pression de pore imposée constante, lors de la déformation d'un matériau, les deux pompes qui gèrent le circuit de pression de pore injectent ou retirent du fluide pour conserver constante la pression indiquée. Par la variation du volume injecté, on peut en déduire la variation du volume de pore de notre échantillon :

$$\Delta(V_{injecte}) = \Delta(V_{pore}) . \quad (39)$$

La déformation volumique globale du matériau est alors déduite en faisant l'hypothèse de négliger la compressibilité des minéraux. Ainsi on considère que l'accroissement du volume de pore rapporté au volume total de l'échantillon représente la déformation volumique :

$$\varepsilon_{vol} = -\frac{\Delta(V_{pore})}{V_T} , \quad (40)$$

où  $V_T$  représente le volume total de l'échantillon.

Ainsi nous avons accès par plusieurs mesures à la déformation volumique. D'une part les jauges de déformation indiquent de façon précise mais locale cette déformation, tandis que la variation du volume de pore nous donne une précision sur la déformation globale de l'échantillon et nous permet de vérifier les valeurs rapportées par les jauges.

La Figure 19 montre des déformations volumiques obtenues lors du même essai que précédemment (expérience C4). On y voit les 4 mesures de déformation volumique issues des 4 paires de jauges ainsi que la valeur moyenne (a) et la mesure obtenue par la variation du volume de pore (b).

La comparaison nous indique qu'avec de telles déformations, le volume de pore traduit bien un comportement homogène. Ainsi les jauges sont effectivement bien moyennables sur l'ensemble de l'échantillon. Dans la suite, tout comme pour les déformations axiales, nous avons choisi de ne présenter que les mesures de jauges moyennées car elles apportent une plus grande précision.

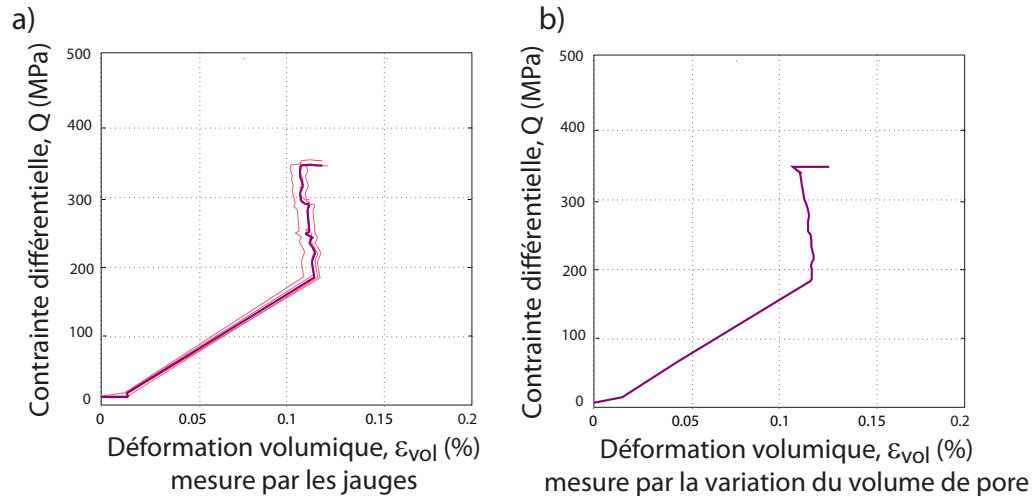


FIGURE 19 – Comparaison des mesures de déformation volumique, issues des paires de jauges et de la variation du volume de pore. a) Les 4 mesures issues des 4 paires de jauge leur valeur moyenne. b) La mesure calculée à partir de la variation du volume de pore. (déformation volumique en fonction de la contrainte axiale appliquée)

### 3.2.2 La perméabilité

EN mécanique des roches pour des questions de stockage ou de condition géologique, les propriétés de transport d'un matériau ont besoin d'être connues. La perméabilité représente la capacité d'une roche à se laisser traverser par un fluide soumis à une variation de pression. Une roche peut-être fortement poreuse mais présenter une perméabilité très faible si le réseau de pore n'est pas connecté. Ce qui contrôle la perméabilité c'est le chemin qu'emprunte le fluide pour traverser complètement le matériau. La perméabilité s'exprime en  $m^2$ . Lors d'une variation de pression de  $\Delta P$ , la perméabilité est caractérisée par le débit de fluide,  $D_f$ , de viscosité dynamique  $\mu$ , qui traverse une longueur  $L$  au travers d'une surface  $A$  (loi de Darcy) :

$$k = \frac{D_f}{\Delta P} \frac{L}{A} \mu. \quad (41)$$

Pour mesurer lors d'une expérience, la perméabilité, il suffit d'imposer une pression de pore en tête de l'échantillon, différente de celle du bas, et de mesurer le débit qui circule.

On note que cette mesure n'est réalisable, et est correcte, que si l'échantillon est complètement saturé en fluide.

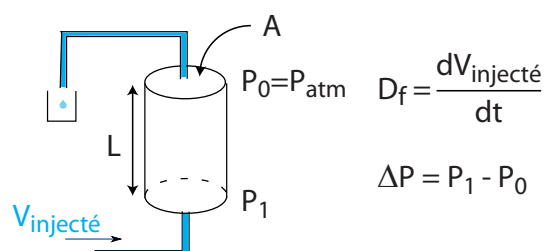


FIGURE 20 – Principe de mesure continue de la perméabilité d'un échantillon avec un circuit ouvert.

### 3.2.3 Les ondes élastiques et les capteurs piézoélectriques

NOUS pouvons placer contre la surface de l'échantillon jusqu'à 16 capteurs piézoélectriques. Ces capteurs sont constitués d'une piézocéramique. On perce la jaquette qui entoure l'échantillon afin de pouvoir placer directement les capteurs en contact avec la surface de l'échantillon. Une colle spéciale nous permet ensuite de faire un joint parfaitement étanche entre la jaquette et le capteur. Toutes ces piézocéramiques génèrent à une onde dont la fréquence dominante est de 1 MHz. Pour cette fréquence, la longueur d'onde associée est de quelques millimètres. Cette onde correspond bien à la taille des fissures que l'on souhaite mesurer.

Il est à noter que de manière générale, la longueur d'onde générée par un capteur est proportionnelle à sa taille. Ainsi, la fréquence utilisée dépend de la technique employée. Par exemple, sur le terrain elle est de l'ordre du Hz (en sismologie), en puits elle est de l'ordre du kHz et en laboratoire, du MHz (Figure 21). Ensuite, en fonction de sa fréquence, une onde sera sensible aux hétérogénéités dont la taille est inférieure à sa longueur d'onde, nous permettant d'obtenir des vitesses homogènes. Ainsi, sur le terrain on peut visualiser une faille ou discontinuité de quelques kilomètres avec une fréquence de l'ordre de 1 Hz. En laboratoire, pour visualiser une fissure de quelques millimètres, un petit capteur piézoélectrique de quelques millimètres, avec une fréquence de l'ordre du MHz, est bien adapté.

Selon notre installation, les piézocéramiques peuvent être de deux types : cylindriques (pour les capteurs sensibles aux ondes de compression P), ou carrés (pour les capteurs sensibles aux ondes de cisaillement S). Ils peuvent aussi avoir deux modes de fonctionnement.

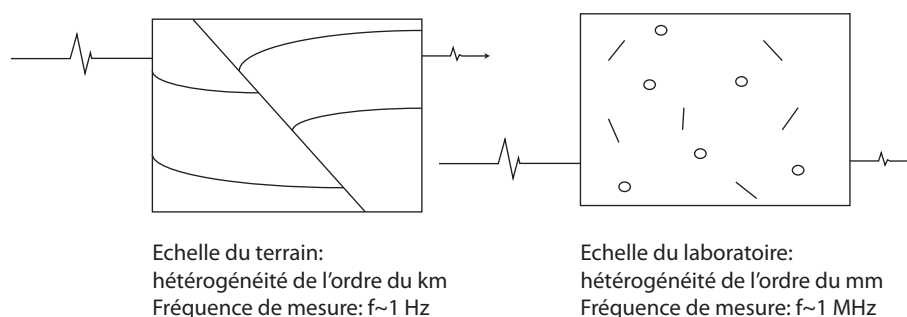


FIGURE 21 – **Différentes échelles d'analyse d'une roche dans son environnement.** Une fréquence d'excitation d'1 MHz permet de visualiser les discontinuités de l'ordre du mm, présentes dans nos échantillons.

### Fonctionnement actif, mesure des Vitesses des Ondes Élastiques (VOE).

DANS le mode actif, un pulse de 250 V est généré et transmis successivement à chaque capteur piézoélectrique par un générateur à impulsion électrique (ASC Ltd<sup>©</sup>). Le piézo-céramique convertit ce pulse électrique en une vibration mécanique qui va se propager dans le matériau. En parallèle, tous les autres capteurs sont des récepteurs et convertissent la forme d'onde perçue en un signal électrique qui va être amplifié à 40 dB à l'aide de pré-amplificateurs. Ces signaux sont enregistrés sur les 16 canaux de l'oscilloscope digital Cecchi<sup>©</sup>. On peut alors mesurer le temps de vol d'un pulse élastique propagé dans la roche. Connaissant la distance du trajet (qui peut être corrigée de ses variations à l'aide des mesures de déformation de l'échantillon), on obtient la vitesse des ondes élastiques (travaux de Birch [1960] et Yin [1992]).

Un arrangement particulier des 16 capteurs (Figure 22) permet d'obtenir les mesures de plusieurs vitesses : vitesses des ondes P à 0° (grâce à deux capteurs situés dans les embases de la cellule), à 30°, à 45°, et à 90°, et la vitesse des ondes S à 90° polarisée horizontalement et verticalement <sup>(1)</sup>.

Pour obtenir les temps de vol, on pointe le temps d'origine du pulse  $t_0$  sur le signal du canal émetteur ainsi que les temps d'arrivée des ondes P et S sur les signaux des canaux récepteurs (Figure 23). Connaissant la disposition des capteurs et donc les distances entre les uns et les autres on obtient alors les différentes vitesses des ondes élastiques (VOE). Un procédé automatique configuré sous le logiciel Insite<sup>©</sup> d'ASC Ltd<sup>©</sup> nous permet d'obtenir toutes les mesures de vitesses au cours d'une expérience.

(1). on rappelle que l'axe à 0° est selon l'axe de symétrie du cylindre et représente l'indice 1 en notation indicielle

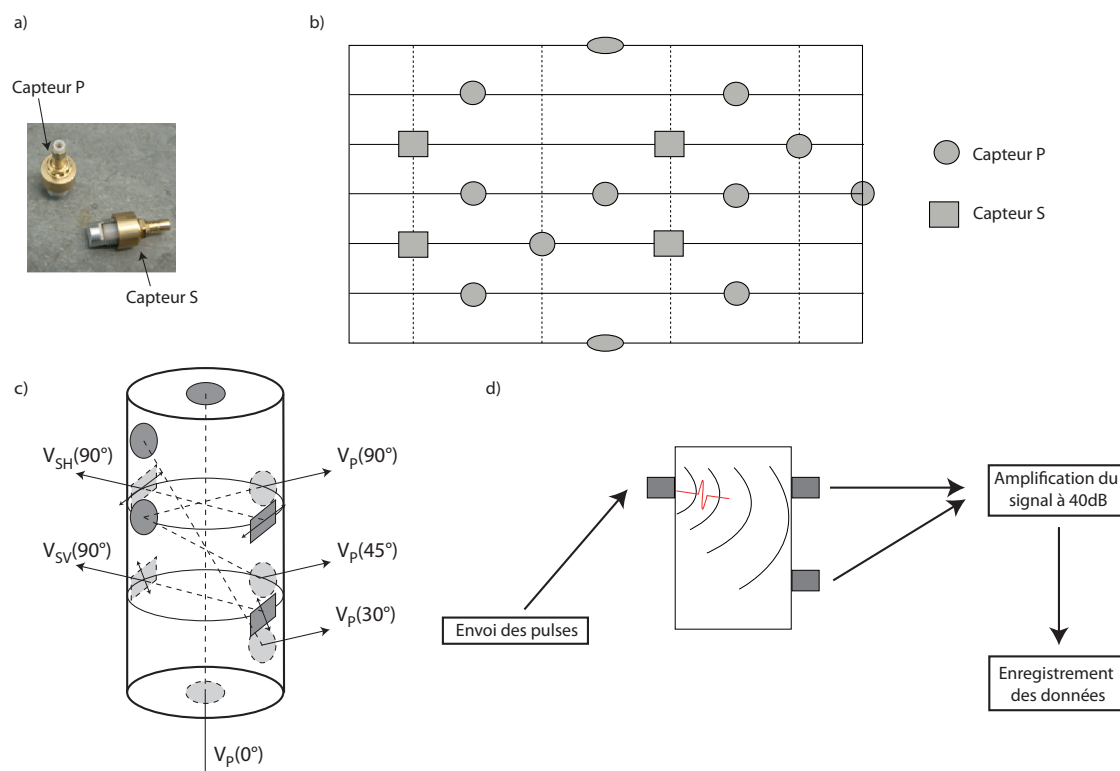


FIGURE 22 – **Disposition et principe de mesures des VOE.** a) Photographie de deux capteurs P et S avant installation sur un échantillon. b) Disposition de tous les capteurs sur un échantillon déroulé. c) Obtention des VOE selon leur orientation et la position des capteurs. d) Schéma de principe d'envoi d'un pulse et de l'enregistrement des temps d'arrivée.

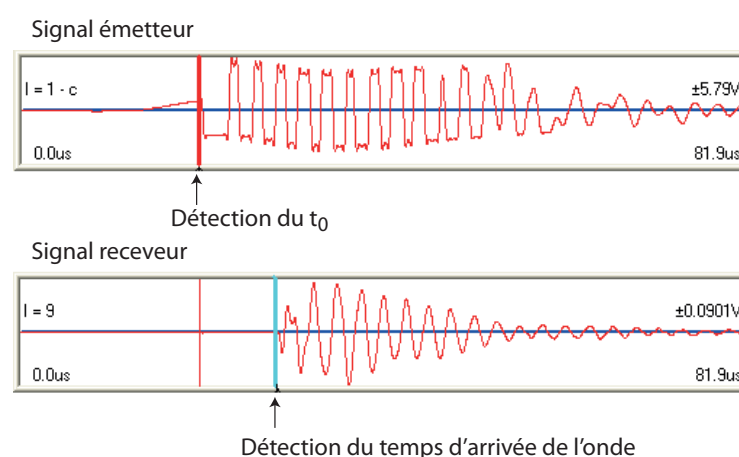


FIGURE 23 – **Traitement du signal : pointage des temps d'arrivée.**

Dans un premier temps, et afin de s'affranchir du bruit de fond, les signaux sont systématiquement filtrés en appliquant un filtre passe-bande. L'intervalle de fréquence choisie pour nos expériences est de  $50\,000 \leq f \leq 2\,000\,000$  Hz. Le temps d'arrivé des ondes,  $t_0$ , est connu pour toutes les mesures. Un premier piquage manuel des ondes P et S est réalisé

afin de régler la sensibilité de la fonction d'autopiquage à utiliser. Par la suite, le logiciel Insite<sup>©</sup> d'ASC Ltd<sup>©</sup> va automatiquement piquer les autres mesures en se basant sur la première mesure réalisée. Il utilise pour cela un algorithme de corrélation croisée avec fenêtre avant/arrière (dit CCR pour Cross Correlation Reduction). Ce genre d'algorithme mesure la similarité entre deux signaux (ici deux formes d'onde). Il nécessite deux signaux : celui de référence que l'on aura piqué au préalable, et celui à traiter. Deux fenêtres avant et arrière sont définies. Elles incluent une partie du jeu de données complet. La taille de ces fenêtres de calcul doit être assez grande pour contenir l'initiation du signal (la variation soudaine de la fréquence et de l'amplitude du signal) mais pas trop large pour ne pas contenir trop d'artefacts du signal. La superposition des deux fenêtres, corrélée à la fonction CCR, permet de piquer l'arrivée des ondes le plus précisément possible. Dans notre cas une marge de 50  $\mu\text{m}$  en arrière de l'arrivée du signal et 35  $\mu\text{m}$  en avant est utilisée, avec un seuil de pointage de 5.

### Fonctionnement passif, enregistrement des émissions acoustiques (EA)

DANS le second mode, le mode passif, les capteurs n'émettent aucun signal. Ils sont seulement en écoute. Dans l'échantillon, dès qu'une onde mécanique ultra-sonore est générée, lors d'une propagation de fissure notamment, elle est détectée par les capteurs, et enregistrée à l'aide d'un système d'enregistrement développé par ASC Ltd<sup>©</sup>. Ces techniques d'enregistrement ont été développées ces dernières années notamment par Thompson et al. [2005, 2006], Schubnel et al. [2006] et Fortin et al. [2009]. Ce système nous permet d'enregistrer, après amplification à 40 dB, chaque événement perçu par les capteurs à un taux maximal de 12 émissions acoustiques par seconde (Figure 24) [Schubnel et al., 2007; Brantut et al., 2011].

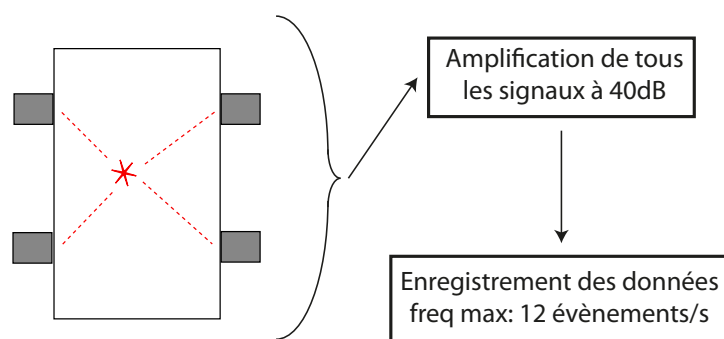


FIGURE 24 – Principe de la mesure des EA.

Comme pour les mesures de vitesses d'ondes élastiques, un procédé de traitement au-

tomatique présent sur le logiciel Insite<sup>©</sup> d'ASC Ltd<sup>©</sup> permet, connaissant la vitesse des ondes élastiques, de localiser la source de chaque émission acoustique. La localisation de ces sources est faite à l'aide d'un algorithme évolutif de type "collapsing grid search" où la description des vitesses du milieu peut être isotrope ou anisotrope. En plus des paramètres fixés par la fonction de localisation, un second filtre est appliqué après calcul de la localisation des sources des émissions acoustiques afin d'affiner nos résultats. Ce filtre se base sur le nombre de capteurs ayant perçu le signal. Nous avons décidé de garder uniquement les émissions acoustiques détectées et localisées par 6 capteurs au moins. Ainsi un événement de rupture peut être décrit par quelques centaines d'émissions acoustiques bien définies au lieu de plusieurs milliers moins précises. La mesure d'erreur d'une localisation d'émission acoustique est de  $\pm 2$  mm.



## 4.1 Les échantillons

L'ÉLABORATION des barreaux de verre se déroule en une succession d'étapes différentes de celle de la fabrication des colis de verre de déchets radioactifs. Des morceaux de colis inactifs (SON68) sont concassés et réduits en poudre. Ils sont ensuite fondus à 1150°C pendant 2 heures puis coulés dans un creuset de 40 mm de diamètre interne et placés dans un four à 520°C. Là, on applique une descente en température contrôlée de 10°C par heure. Le verre obtenu par cette méthode possède donc une composition chimique très proche du verre utilisé pour les colis de déchets radioactifs. La principale différence vient des éléments radioactifs qui sont remplacés par des platinoïdes (du ruthénium et du paladium) qui simulent la présence d'éléments exogènes à la matrice vitreuse de par leur taille, leur aspect et leur répartition. La composition simplifiée de nos échantillons est donnée dans le Tableau 1.

À l'échelle atomique [Cormier et al., 2000] ce verre est constitué principalement d'un réseau désordonné formé de motifs de base tétraédriques : [SiO<sub>4</sub>], [AlO<sub>4</sub>] et [BO<sub>4</sub>]. Les

Tableau 1 – **Composition chimique des principaux éléments du verre SON68, correspondants aux échantillons étudiés.**

Éléments	Échantillons (verre SON68)
<i>SiO<sub>2</sub></i>	<b>42,73%</b>
<i>B<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	<b>12,57%</b>
<i>Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	<b>4,97%</b>
<i>Na<sub>2</sub>O</i>	9,31%
<i>Li<sub>2</sub>O</i>	1,98%
<i>CaO</i>	3,78%
<i>Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub></i>	3,10%
platinoïdes ( <i>RuO<sub>2</sub>+Pd</i> )	<b>1,82 %</b>

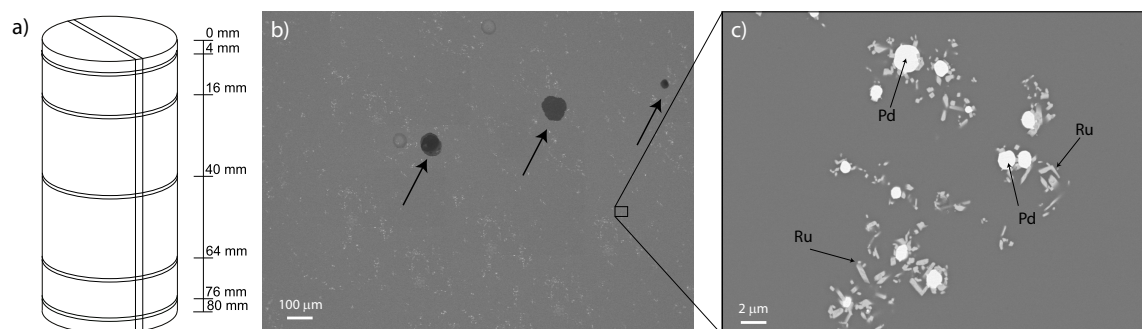


FIGURE 25 – **Images MEB de la structure du verre sain.** a) découpes réalisées dans un échantillon de verre sain. b) et c) Observations réalisées au Microscope Électronique à Balayage (MEB) : Observation de la texture homogène du verre parsemé de quelques bulles piégées, indiquées par des flèches (b) ; Observation zoomée des platinoïdes de Pd et Ru (c).

alcalins et alcalino-terreux ( $Na_2O$ ,  $Li_2O$ ,  $CaO$ ) au sein de ce réseau jouent le rôle de stabilisateur. Les images présentes sur la Figure 25b et c, sont issues d'observations faites sur un échantillon sain (R7T7\_C10) dans lequel plusieurs coupes ont été réalisées (Figure 25a) pour mettre en évidence la structure du verre sain. On y voit qu'à l'échelle de l'échantillon, la structure de ce verre est très homogène : on observe une matrice amorphe très fine, parsemée de façon homogène d'amas cristallisés (les platinoïdes) en bâtons blancs (le Ru) ou en cristaux circulaire (le Pd). La porosité est quasiment inexistante en dehors de quelques bulles d'air piégées lors de la coulée du verre et qui ne sont pas connectées entre elles.

Du fait du refroidissement lent des échantillons, le verre fabriqué suivant ce protocole est exempt de toute fissure et les contraintes internes sont minimisées. Ainsi, les échantillons utilisés ont une composition similaire au verre des colis radioactifs mais une structure différente (de par la fissuration et le réseau de bulles). On constate sur les barreaux fournis, une partie haute qui n'est pas utilisable à cause d'une retassure, et une partie basse plus dense où les platinoïdes se sont accumulés. Comme la hauteur utile de nos échantillons est seulement de 80 mm, on s'est affranchi de ces inhomogénéités en taillant nos cylindres dans la partie homogène restante des barreaux (opérations effectuées par PRIMEVerre<sup>©</sup> SARL - Figure 26).

Les échantillons sont alors équipés des jauges de déformations et des capteurs piézo-électriques et sont placés dans une jaquette en néoprène.

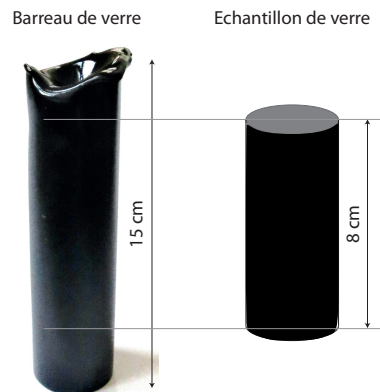


FIGURE 26 – Barreau de verre brut et échantillon obtenu après découpe.

## 4.2 Étude préliminaire sur le comportement du verre sain

UNE étude préliminaire sur le comportement du verre sain a été réalisée dans le but de mesurer les propriétés mécaniques du verre intact ainsi que son comportement sous pression, avant de passer à l'étude du comportement du verre fissuré. Une série d'expériences en déformation contrôlée a été réalisée à température ambiante sur des échantillons de verre intact selon le protocole des tests de rupture. Du fait du caractère non poreux de l'échantillon, aucune pression de fluide n'est utilisée.

En rassemblant nos trois expériences réalisées (notées R7T7\_C1, C2 et C3) à différentes pressions de confinement, les données sur le verre intact présentées par Ougier-Simonin et al. [2010] (O1, O6), ainsi que les données sans pression de confinement réalisées par V.Doquet du Laboratoire de Mécanique des Solides de l'École de Polytechnique (D1, D2, D3), on obtient le Tableau 2 :

Tableau 2 – **Récapitulatif des expériences réalisées sous conditions déviatoriques sur le verre sain.** Les échantillons notés O1 et O6 correspondent aux mesures réalisées par Ougier-Simonin et al. [2010] et ceux notés D1 à D3 sont ceux réalisés au LMS de l'école Polytechnique [Dubé et al., 2010]. Le symbole  $\emptyset$  représente les échantillons n'ayant pas atteint la rupture.

Échantillons	R7T7_C1	R7T7_C2	R7T7_C3	R7T7_O1	R7T7_O6
$\sigma_3$ (MPa)	10	5	15	15	15
$Q_{max}$ (MPa)	202	521	$\emptyset$	$\emptyset$	665

R7T7_D1	R7T7_D2	R7T7_D3
0	0	0
265	143	208

### 4.2.1 Comportement mécanique

L'EXPÉRIENCE C3, au confinement de 15 MPa, n'a pas atteint la rupture. C'est le cas aussi d'une des expériences de Ougier-Simonin et al. [2010] notée O1. À 5 MPa de confinement, l'expérience C2 a atteint une rupture à  $Q_{max}=521$  MPa. L'expérience C1 présente un résultat bien différent en matière de contrainte à la rupture. En effet, ayant une pression de confinement intermédiaire on s'attend à une rupture à  $521 < Q_{max} < 700$ . Cependant, un artefact expérimental est survenu pendant la mise en contrainte de l'échantillon qui l'a affaibli en concentrant les contraintes de façon hétérogène. Nous conservons tout de même ces données car malgré sa rupture prématurée, le comportement mécanique de cet échantillon n'a globalement pas été modifié comme le montrent les graphiques de la Figure 27.

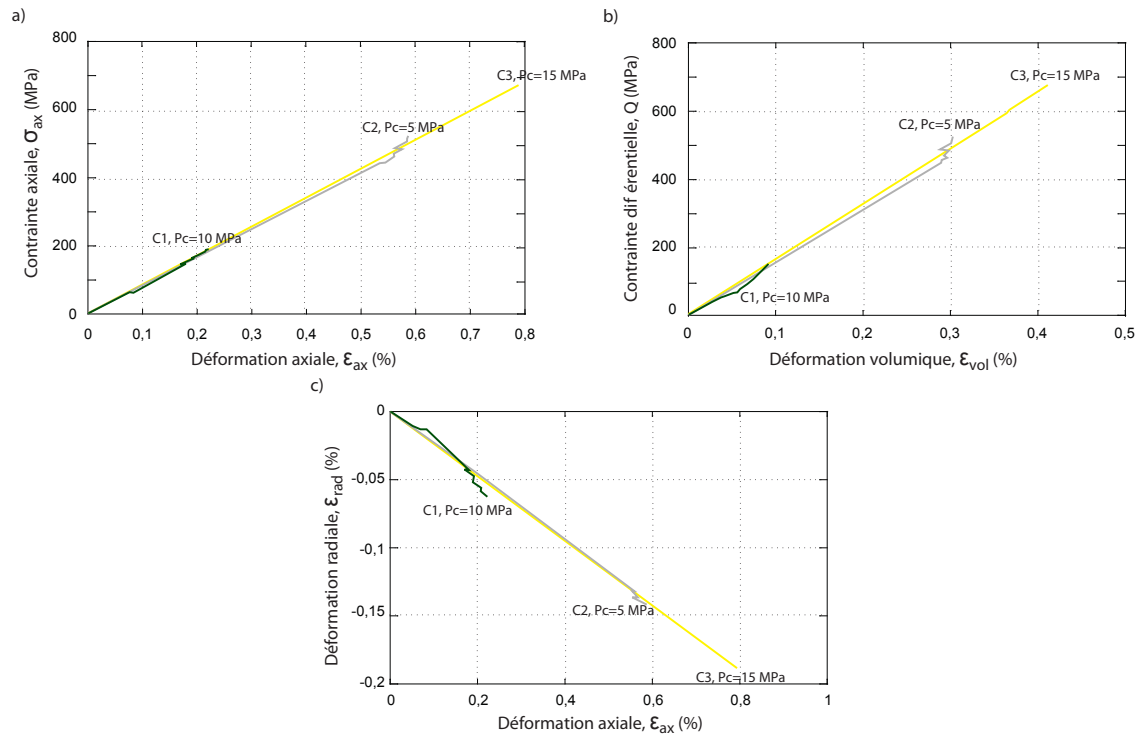


FIGURE 27 – **Comportement mécanique du verre sain pour différentes pressions de confinement.** a) Contrainte axiale en fonction de la déformation axiale. b) Contrainte différentielle avec la déformation volumique. c) Déformation radiale en fonction de la déformation axiale.

Sur les graphiques de la Figure 27, sont représentés le comportement mécanique des expériences C1, C2 et C3 avec l'évolution de la contrainte axiale en fonction de la déformation axiale (a), de la contrainte différentielle avec la déformation volumique (b) et de la déformation radiale en fonction de la déformation axiale (c).

On note par convention en positif les déformations de compression (et en négatif la dilatance des échantillons). En observant alors les déformations volumiques on voit qu'il n'y a pas d'apparition de dilatance. En observant aussi la parfaite linéarité entre contrainte et déformation axiale, on comprend que le verre sain a un comportement parfaitement élastique, même au seuil de la rupture. On déduit également de ces graphiques les paramètres élastiques intrinsèques à la matrice vitreuse : module de Young (pente du graphique a) et coefficient de Poisson (pente du graphique c). Ce sont des modules statiques notés,  $E_{stat}$  et  $\nu_{stat}$ .

Tableau 3 – **Récapitulatif des paramètres du verre sain.**

Échantillons	R7T7_C1	R7T7_C2	R7T7_C3
$\sigma_3$ (MPa)	10	5	15
$Q_{max}$ (MPa)	202	521	>700
$\varepsilon_{ax}$ à la rupture (%)	0,21	0,58	>0,8
$E_{stat}$ (GPa)	83,6	83,7	84,8
$\nu_{stat}$	0,254	0,257	0,259

#### 4.2.2 Paramètres élastiques dynamiques et endommagement

LE verre sain est décrit par une géométrie isotrope. Ainsi, mesurant une vitesse des ondes P et une vitesse des ondes S il est possible de déterminer les modules  $K$  et  $G$  décrivant la rigidité du matériau.

À partir des valeurs de  $K$  et  $G$ , il est possible de connaître les modules de Young et coefficient de Poisson du matériau que l'on notera  $E_{dyna}$  et  $\nu_{dyna}$  pour les différencier de ceux mesurés à partir des déformations.

$$K = \frac{E_{dyna}}{3(1 - 2\nu_{dyna})} \quad G = \frac{E_{dyna}}{2(1 + \nu_{dyna})}. \quad (42)$$

Tableau 4 – **Vitesses et paramètres élastiques obtenus à pression ambiante pour le verre sain.**

Vitesses	$V_P=5920$ m/s	$V_S=3380$ m/s
Composants du Tenseur de rigidité	$K=56,3$ GPa	$G=32,4$ GPa
Paramètres élastiques dynamiques	$E_{dyna}=81,5$ GPa	$\nu_{dyna}=0,259$

On note une très bonne corrélation entre  $E_{dyna}$  et  $E_{stat}$  ainsi qu'entre  $\nu_{dyna}$  et  $\nu_{stat}$ . On peut donc moyenner ces résultats et obtenir les paramètres intrinsèques de la matrice vitreuse non endommagée :  $E_0=82,9$  GPa et  $\nu_0=0,257$ .

Durant l'expérience C2, deux vitesses ont été mesurées :  $V_P(90^\circ)$  et  $V_{SH}(90^\circ)$  (Figure 28a). Il est alors possible de calculer par le modèle isotrope la densité de fissure  $\rho_c$  (Figure 28b).

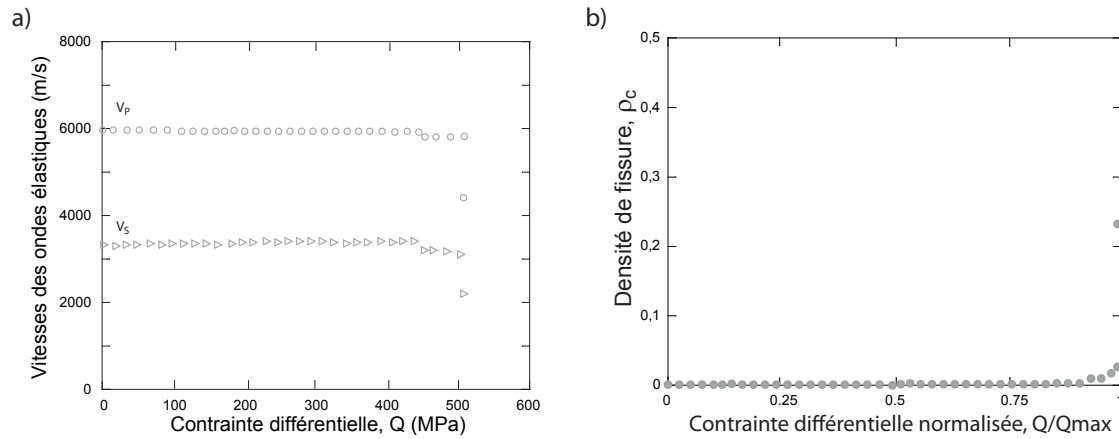


FIGURE 28 – **Endommagement mécanique lors d'un test de rupture sur un verre sain.** a) Vitesses des ondes P et S (cas isotrope). b) Densité de fissure,  $\rho_c$ .

Il faut noter que lors de cette expérience, on s'attend à un endommagement par fissuration verticale. Une géométrie TI devrait alors apparaître. Cependant, nous n'avons pour cette première expérience qu'un nombre réduit de capteur. La densité de fissure est interprétée en isotrope. Elle représente une borne supérieure de la densité de fissure orientée que l'on aurait pu mesurer en TI.

La caractéristique fragile est à nouveau observée par ces données. On voit en effet que les vitesses ne varient jamais pendant la montée en contrainte. Au moment de la rupture seulement, elles chutent. L'observation de la densité de fissure nous donne la même indication : elle reste nulle pendant toute la montée en contrainte et augmente brusquement au moment de la rupture.

### 4.2.3 Enveloppe et modes de rupture

GRÂCE aux différentes expériences réalisées à de diverses pressions de confinement, il est possible de déterminer une enveloppe de rupture du verre sain. Ce genre de graphique est utile pour remonter aux paramètres de rupture du matériau étudié (angle de frottement, coefficient de friction, mode de fissuration...).

Dans un plan de Mohr-Coulomb les contraintes tangentielle ( $\tau$ ) et normale ( $\sigma_n$ ) se décrivent par rapport à l'angle d'une facette d'orientation  $\theta$  par :

$$\tau = (\sigma_1 - \sigma_3) \sin\theta \cos\theta \quad \text{et} \quad \sigma_n = \sigma_1 \cos^2\theta + \sigma_3 \sin^2\theta \quad (43)$$

Chaque expérience menée à la rupture donne un cercle dans le plan de Mohr-Coulomb qui décrit la rupture de cette expérience. L'enveloppe de tous les cercles indique le critère de rupture global du matériau considéré. Dans notre cas, l'enveloppe de rupture du verre sain est donnée en Figure 29.

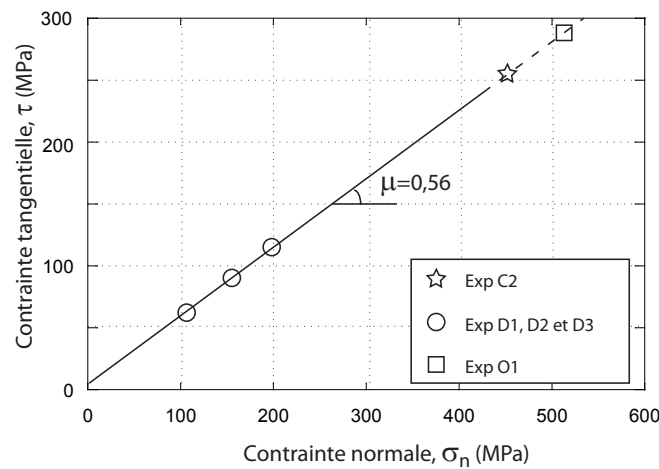


FIGURE 29 – **Représentation de l'enveloppe de rupture du verre sain dans un plan de Mohr-Coulomb.** La donnée représentée par l'étoile est issu de l'expérience C2, tandis que le carré représente la rupture à la pression de confinement de 15 MPa issu de l'étude de Ougier-Simonin et al. [2010] et les cercles sont les données en uniaxial réalisées au LMS de l'École de Polytechnique.

Ce graphique nous permet de voir la régularité des résultats d'un échantillon à l'autre. La forte valeur du coefficient de régression linéaire ( $r^2=0,9998$ ) montre que les échantillons de verre fournis pour cette étude présentent tous un comportement mécanique identique. On obtient grâce à cette régression linéaire le coefficient de friction du verre sain :  $\mu=0,56$ .

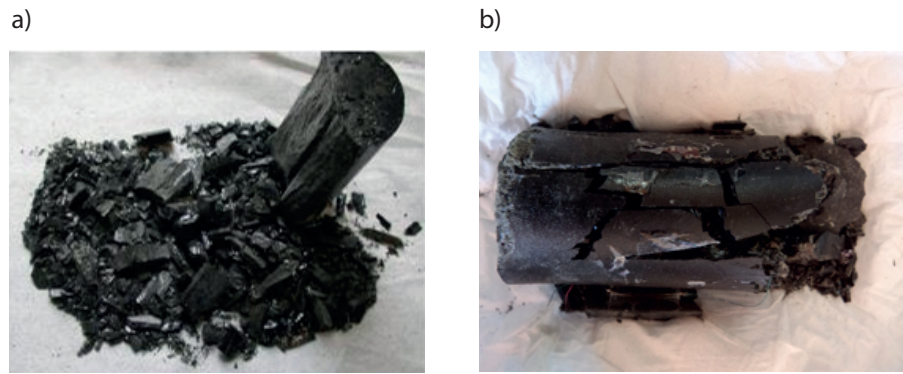


FIGURE 30 – Photographie d'échantillons après rupture à différentes pressions de confinement. a) 0 MPa et b) 10 MPa.

En observant deux échantillons *post-mortem* ayant subi des expériences à basse et haute pression de confinement, on voit différents modes de rupture. En effet, la Figure 30 est une photographie de deux échantillons : D1 et C2 dont l'expérience s'est déroulée respectivement, à 0 et 10 MPa de pression de confinement. On voit très clairement dans le premier cas une ouverture de fissure verticale de type mode I. Dans le second cas des fissures inclinées sont apparues montrant que du cisaillement a commencé à apparaître à cette pression. Cette observation montre le changement de mode de rupture avec la pression de confinement. On note alors que la fin de l'enveloppe de rupture a été tracée en pointillés. Si on pouvait réaliser des ruptures à plus hautes pressions de confinement, on s'attendrait alors à avoir un changement de pente de l'enveloppe de rupture due au changement de mode de rupture.



À partir d'hypothèses sur la description élastique des matériaux, il est possible de décrire les composants élastiques liés à la densité de fissure. Ces hypothèses sont les suivantes :

- hypothèse de non-interaction des fissures, pour généraliser à une population de fissures et introduire le paramètre de densité de fissure,
- hypothèse de fissures planes
- hypothèse d'un réseau de fissures homogène.

Le paramètre d'endommagement choisi provient de la description du volume d'influence des fissures. Ainsi, connaissant le lien entre les vitesses des ondes élastiques et les composantes du tenseur de rigidité ou de souplesse on peut désormais décrire l'endommagement et le suivre au cours d'une expérience (au travers des mesures de vitesse).

Le matériau considéré dans cette étude est issu de barreaux de verre. Initialement ces échantillons présentent une structure parfaitement homogène avec une très faible porosité, non connectée (due à quelques bulles d'air piégées). Leur comportement mécanique est décrit par une élasticité parfaite jusqu'à la rupture fragile de l'échantillon. Un module de Young de  $E_0=83$  GPa est mesuré ainsi qu'un coefficient de Poisson de  $\nu_0=0,26$ . La rupture est décrite par un coefficient de friction de 0,56.



# Troisième partie

## Microstructure d'un réseau de fissures

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>56</b>
<b>2</b>	<b>Calcul de la densité de fissure par deux approches</b>	<b>60</b>
2.1	Par observation de la microstructure . . . . .	60
2.1.1	Représentation et calcul du réseau de fissures . . . . .	60
2.1.2	Description du réseau de fissures . . . . .	64
2.1.3	Géométrie des fissures . . . . .	67
2.2	Par mesure des vitesses des ondes élastiques . . . . .	68
<b>3</b>	<b>Comparaison des deux approches</b>	<b>70</b>

---

L'OBJECTIF de ce premier axe d'étude est de décrire le réseau de fissures introduit dans le verre et d'en préciser sa géométrie. Un second objectif est de comparer les observations de microstructures à ce que la théorie de l'endommagement pourrait prédire. Cette comparaison est très utile à faire ici car la validation de la théorie par l'expérience permettrait de renforcer de nombreux résultats expérimentaux sur le granit [Pratt et al., 1977; Kranz et al., 1979; Benson et al., 2006; Nasser et al., 2009], le grès [Fortin et al., 2006] ou sur le basalte [Vinciguerra et al., 2005; Adelin et al., 2011; Fortin et al., 2011; Nara et al., 2010] qui sont interprétés en termes de densité de fissure.

Des mesures directes et indépendantes de la densité de fissure, issues d'observation de microstructures sont nécessaires. Malheureusement, ce genre d'observation est en général difficile à obtenir dans les roches. Ceci est dû à trois principales raisons : (i) Une estimation fiable de la taille des fissures est difficile à obtenir. Cela est dû à la structure complexe des roches contenant des joints de grains. (ii) Les fissures introduites sous contrainte dans un échantillon peuvent être modifiées lorsque l'échantillon est déchargé [Fortin et al., 2007]. (iii) Enfin, la géométrie des fissures affecte fortement les prédictions théoriques selon le modèle de NIA (bien que des progrès ont été réalisés pour prédire ces effets, notamment par Mear et al. [2007]).

Ainsi pour mesurer et quantifier correctement un réseau de fissures il est plus fiable de disposer d'un matériau amorphe avec un réseau de fissures introduit et mesuré à pression ambiante, avec des fissures de géométrie simple. C'est pour ces raisons que l'étude des fissures dans le verre est non seulement indispensable ici, mais aussi très utile d'un point de vue fondamental. Le verre présentant une structure parfaitement amorphe, la géométrie des fissures pourra être facilement observée. Les données présentées dans cette partie concernent toutes, des échantillons fissurés thermiquement, mais n'ayant pas subi de déformation mécanique.

Dans le verre, le réseau de fissures est introduit à pression ambiante par choc thermique. Il a en effet été montré qu'en l'absence de grains cristallisés, comme dans les roches, il n'est pas possible d'introduire un réseau de fissures par simple élévation de température. Il n'est pas non plus possible d'introduire un réseau de fissure régulier par endommagement mécanique. En effet, dû au comportement parfaitement élastique du verre, la fissuration ne se développe que lorsque la rupture se produit. L'étude de Ougier-Simonin et al. [2011] montre que la méthode du choc thermique est la seule à pouvoir introduire un réseau de fissures dans le verre. En voici le protocole.

L'ÉCHANTILLON est placé dans un four qui monte en température à raison de  $1^{\circ}\text{C}/\text{min}$  jusqu'à  $T_M$ . Il y est laissé au moins 2h afin d'obtenir une homogénéisation de la température jusqu'au cœur de l'échantillon. Ensuite, en quelques secondes, l'échantillon est plongé dans un bac d'eau à température ambiante (Figure 31a). Un réseau de fissures apparaît en surface. Celui-ci reste visible à l'œil nu pendant les premières secondes, le temps que la pellicule d'eau présente en surface s'évapore (Figure 31b).

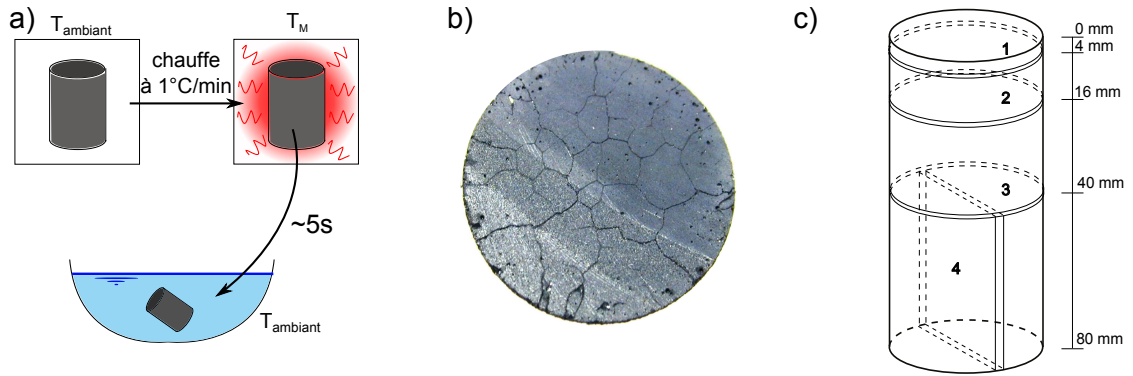


FIGURE 31 – **Principe de l'initiation du réseau de fissures par trempe.** a) Protocole du traitement thermique. b) Photo prise de la surface de l'échantillon pendant l'évaporation de l'eau. c) Découpe de quatre sections fines dans un échantillon fissuré thermiquement

Nous allons dans le chapitre 2, étudier la densité de fissure introduite par le choc thermique. En première section, nous la déterminerons par observation directe en découpant des sections dans l'échantillon fissuré (les différentes coupes sont indiquées en Figure 31c). Dans l'étude de Ougier-Simonin et al. [2011], les auteurs estiment qu'une symétrie TI est attendue. Pour la vérifier, dans le demi-cylindre haut, trois sections horizontales à différentes hauteurs sont coupées (coupe 1, 2 et 3, respectivement à 4 mm, 16 mm et 40 mm du bord supérieur de l'échantillon). Une coupe axiale du demi cylindre bas est aussi réalisée

(coupe 4). On s'attend, pour vérifier la symétrie TI, à des fissures verticales dans la coupe axiale et une isotropie de l'orientation des fissures sur les coupes radiales. Les sections sont alors analysées au Microscope Électronique à Balayage (MEB). Le MEB prend des images grossies  $\times 60$ . Une mosaïque de la section complète est recomposée en collant bords à bords chaque image.

Des observations préliminaires permettent de mettre en évidence le fait que la structure homogène du verre est idéale pour une observation des fissures. Les images MEB montrent clairement les fissures (Figure 32).

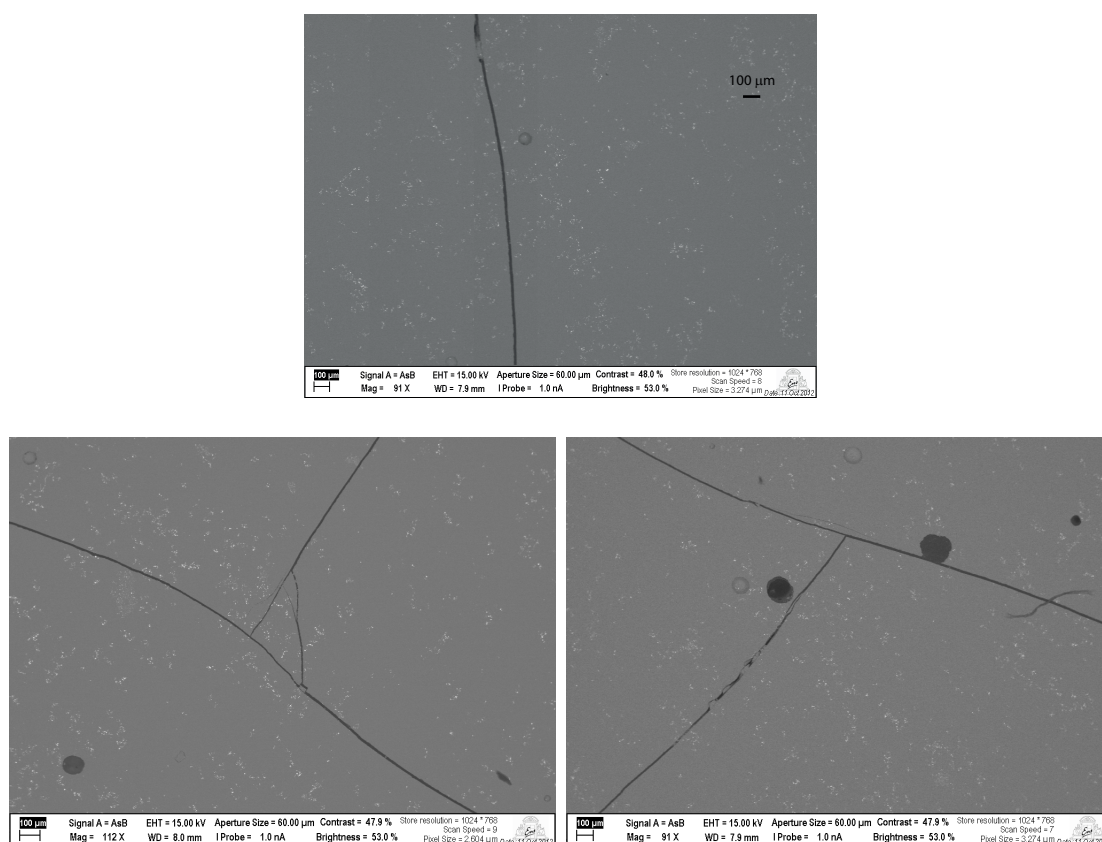


FIGURE 32 – Images de fissures dans le verre et de leurs intersections. L'échelle vue sur la première image est la même pour les deux suivantes.

Sur ces images MEB, deux types d'hétérogénéités sont observées : les bulles (point noirs) et les fissures (fines lignes). Par traitement d'image on va pouvoir jouer sur le contraste pour mettre en évidence ces défauts. Les bulles sont filtrées et rejetées. Le réseau de fissures apparaît alors clairement et est vectorisé. Quelques petites fissures sont oubliées par le traitement d'image et sont retracées à la main. On peut alors mesurer, compter et classer selon leur orientation toutes ces fissures.

Il faut remarquer que même si la plupart des fissures sont bien linéaires, certaines dévient de la ligne droite. Nous supposons que si la déviation est d'un angle inférieure à  $10^\circ$  les deux branches sont traitées comme une unique fissure.

L'observation du réseau complet des fissures a été réalisée sur les échantillons notés R7T7\_C11, R7T7\_C18 et R7T7\_C19.

Dans la seconde section (toujours du chapitre 2), nous déterminerons la densité de fissure par mesure des vitesses des ondes élastiques. Enfin dans le chapitre suivant, nous chercherons à la comparer aux mesures faites par observations microstructurales.

## Calcul de la densité de fissure par deux approches

### 2.1 Par observation de la microstructure

#### 2.1.1 Représentation et calcul du réseau de fissures

TROIS températures de choc thermique sont étudiées ici : 100°C (R7T7\_C19), 200°C (R7T7\_C18) et 300°C (R7T7\_C11). Il a été montré qu'au delà, l'échantillon fissuré n'est pas stable et se fracture au moment du choc thermique [Ougier-Simonin, 2010].

Dans l'échantillon complet, les fissures sont en trois dimensions. Dans un repère ortho-normé (Figure 33a), les angles décrivant la position d'un vecteur sont  $\phi$  et  $\theta$ . Quand on veut décrire une fissure issue d'une section en deux dimension, on se réfère à l'angle  $\phi$  ou  $\theta$ . Pour les plans horizontaux, l'orientation des fissures est indiquée en fonction de l'angle  $\theta$  (Figure 33b) tandis que dans les plans verticaux c'est en fonction de l'angle  $\phi$  (Figure 33c).

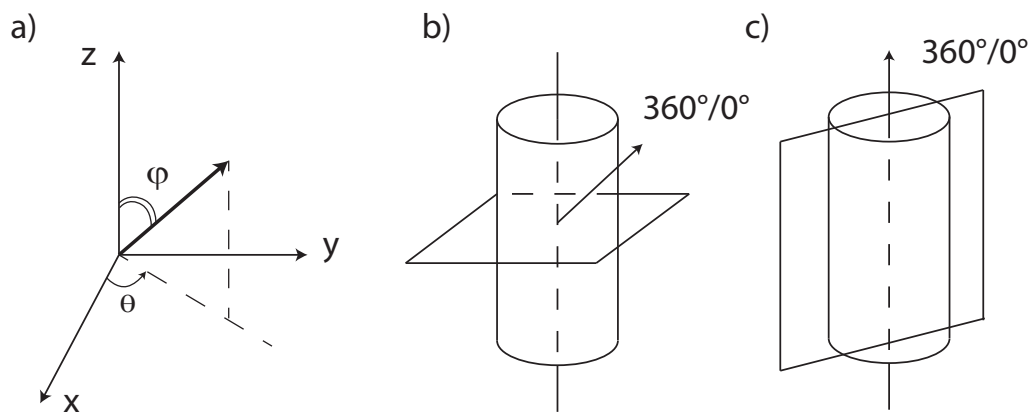


FIGURE 33 – **Référentiel de description de l'orientation des fissures.** a) Référentiel en 3D permettant de décrire en 2D l'orientation des fissures selon une coupe horizontale (b) ou verticale (c).



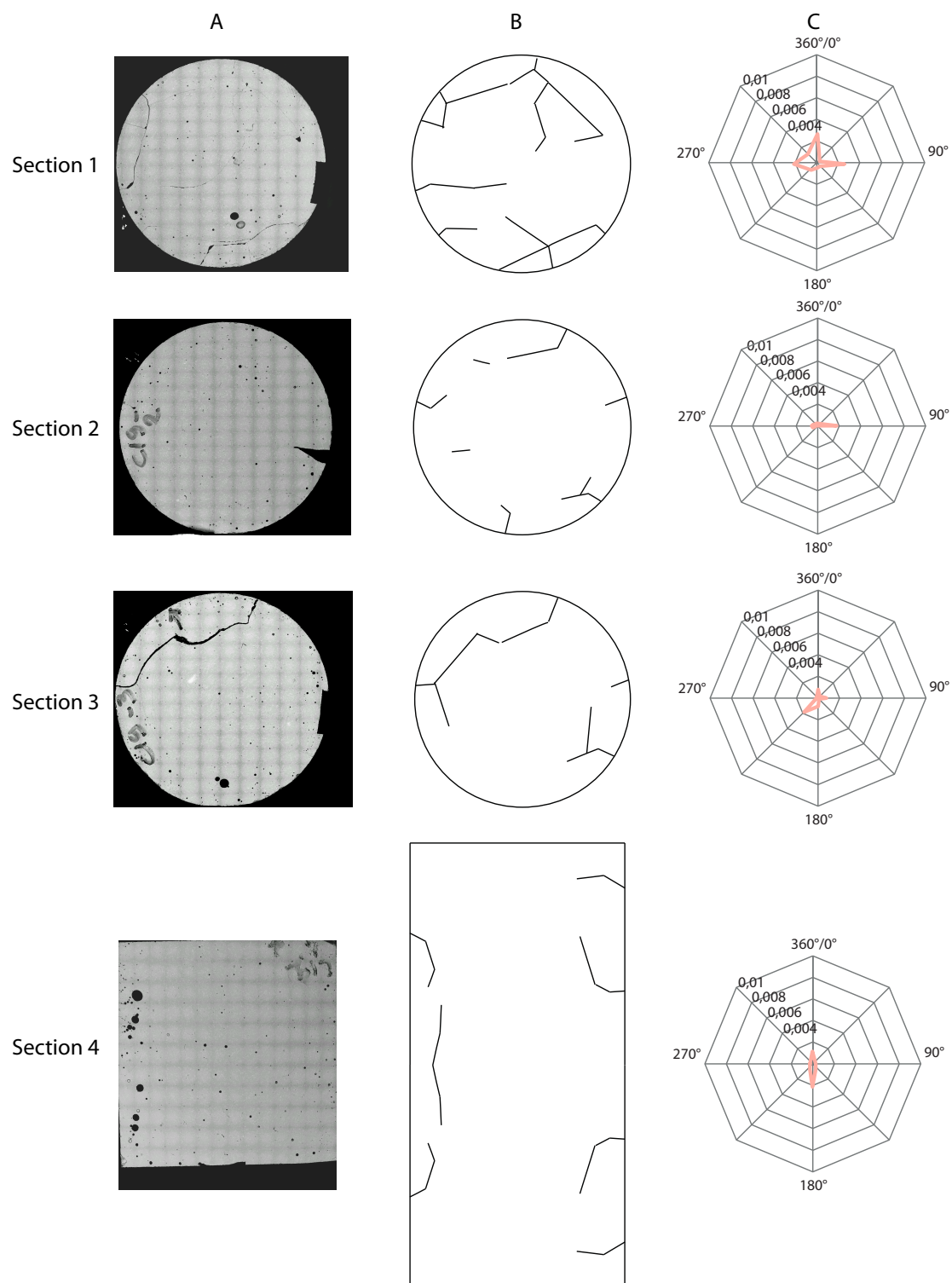


FIGURE 34 – Réseau de fissures d'un échantillon traité à 100°C. Colonne A : Images MEB des sections (chaque petit carré est une image grossie  $\times 60$ ). Colonne B : Réseau vectoriel des fissures mis en évidence par traitement des contrastes. Colonne C : Densité de fissure orientée. Ligne 1 à 4 : Coupe 1 à 4 de la Figure 31c.

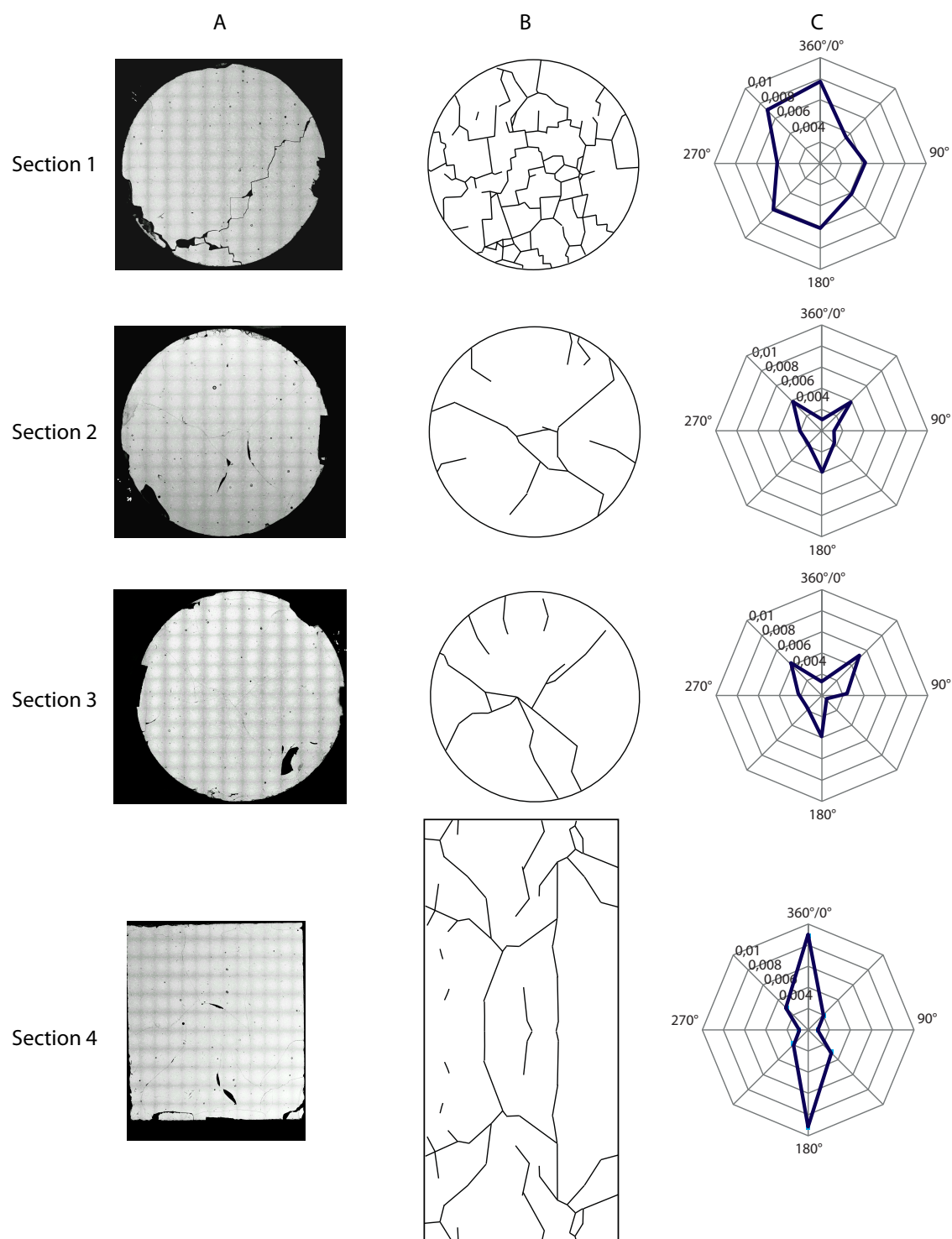


FIGURE 35 – Réseau de fissures d'un échantillon traité à 200°C. Colonne A : Images MEB des sections (chaque petit carré est une image grossie  $\times 60$ ). Colonne B : Réseau vectoriel des fissures mis en évidence par traitement des contrastes. Colonne C : Densité de fissure orientée. Ligne 1 à 4 : Coupe 1 à 4 de la Figure 31c.

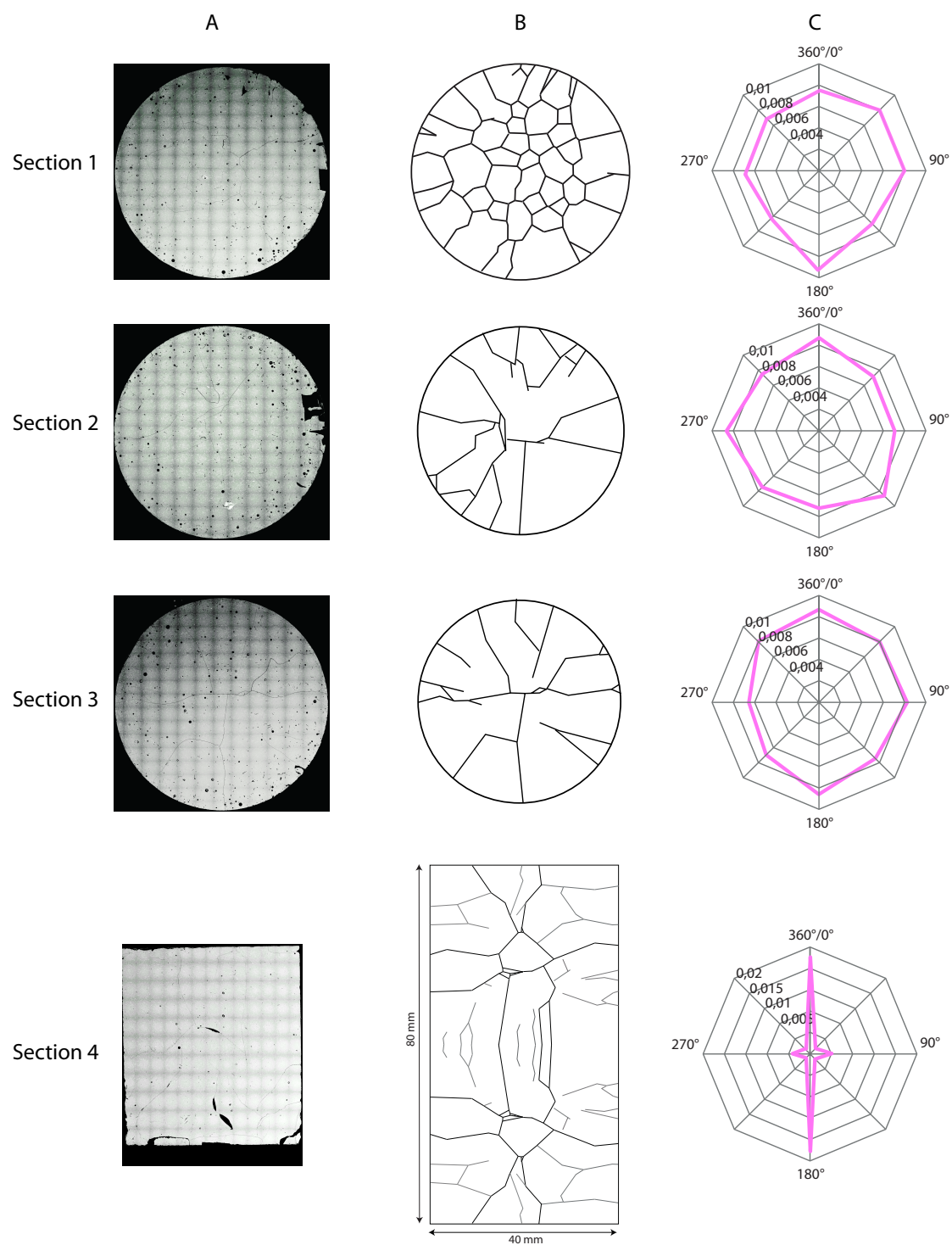


FIGURE 36 – Réseau de fissures d'un échantillon traité à 300°C. Colonne A : Images MEB des sections (chaque petit carré est une image grossie  $\times 60$ ). Colonne B : Réseau vectoriel des fissures mis en évidence par traitement des contrastes. Colonne C : Densité de fissure orientée. Ligne 1 à 4 : Coupe 1 à 4 de la Figure 31c.

Sur les Figures 34 à 36 sont présentés les résultats section par section selon les découpes de la Figure 31c. Ainsi, les trois premières lignes sont les représentations des trois plans radiaux du haut vers le centre de l'échantillon et les dernières lignes correspondent aux coupes axiales réalisées dans le demi-cylindre bas. Cette section est doublée après traitement d'images, en supposant un axe de symétrie au centre de l'échantillon. Dans chacune de ces figures, la colonne A présente les mosaïques des sections obtenues au MEB. La colonne B est la représentation vectorielle de l'image de la colonne A. Elle présente donc les réseaux de fissures déduits après traitement d'images. La colonne C donne la densité de fissure orientée. Cette dernière quantité est obtenue en classant les rayons des fissures d'après leur orientation (par groupe de  $45^\circ$ ). Notons que pour des raisons graphiques (surtout pour la coupe 4), la direction des fissures est considérée et non pas leur normale. Les angles de chaque plan sont définis à partir de la position  $0^\circ/360^\circ$  qui est fixée selon les Figures 33 b et c. Ainsi, par exemple, le point à l'angle  $360^\circ/0^\circ$  dans la coupe 4, représente la densité des fissures dont la direction est verticale. On rappelle que la densité de fissure représente la somme des rayons des fissures élevés au cube. Ainsi pour déterminer  $(\rho_c)_{0/360^\circ}$  par exemple, on calcule  $\sum (a_{0/360^\circ}^{(i)})^3 / V_T$ , où  $a_{0/360^\circ}^{(i)}$  est le rayon de la fissure verticale  $i$ .

### 2.1.2 Description du réseau de fissures

L'ÉCHANTILLON fissuré par un choc thermique à  $100^\circ\text{C}$  est représenté en Figure 34. Observons tout d'abord l'allure du réseau de fissure présenté en colonne B. D'après la section 1, on voit légèrement que des effets de bords sont présents. Les fissures sur cette section sont plus nombreuses que dans les section 2 et 3. On remarque sur la section verticale (section 4) quelques longues fissures verticales. Il n'y a pas de fissure au cœur de l'échantillon.

Maintenant, en observant la densité orientée des fissures (colonne C) on voit que celle-ci est globalement très faible (toujours sous les 0.002). On voit aussi qu'elle diminue avec la profondeur. En effet, sur la section 1, la densité de fissure est plus importante qu'en section 2 et 3. Le Tableau 5 récapitule ces résultats pour les trois section horizontales et pour les trois échantillons.

Tableau 5 – **Densité de fissure moyenne mesurée dans chaque coupe horizontale.**

		$T_M$	section 1	section 2	section 3
Figure 34	C19	$100^\circ\text{C}$	0,010	0,005	0,001
Figure 35	C18	$200^\circ\text{C}$	0,040	0,021	0,022
Figure 36	C11	$300^\circ\text{C}$	0,040	0,041	0,042

On remarque enfin que la densité de fissure orientée pour la coupe verticale (section 4)

présente l'anisotropie attendue. Cette densité reste tout de même très faible. Ainsi pour un choc à la température la plus faible, la densité de fissure introduite semble être selon une géométrie TI mais est très faible. La distribution des fissures n'est pas homogène dans tout l'échantillon.

L'échantillon fissuré par un choc à 200°C est représenté en Figure 35. On voit sur les images de la colonne B que le réseau de fissure est assez dense. Les effets de bords sont cette fois bien plus visibles : on trouve un réseau différent au bord par rapport au centre (fissures plus nombreuses et plus petites en section 1). On voit tout de même une isotropie de la distribution des fissures dans les trois coupes radiales. Avec le Tableau 5, on remarque que la densité de fissure introduite est cette fois moins négligeable. De plus, si on ne considère pas la section 1, le reste de l'échantillon montre une répartition homogène de la densité de fissure (avec une valeur constante de 0,02).

À cette température de choc thermique, on voit très clairement sur la coupe verticale les longues fissures verticales. D'ailleurs si on passe à l'observation des densités de fissure orientée (colonne C) on voit très bien pour la section 4, l'anisotropie avec la prédominance des fissures verticales.

Le troisième échantillon fissuré par un choc à 300°C est représenté en Figure 35. Les observations du réseau de fissure (colonne B) montre un effet de bords avec la section 1 : les fissures y sont plus petites et plus nombreuses qu'en section 2 et 3. Cependant on voit dans la section 1 que le réseau de fissure a une géométrie hexagonale/pentagonale nous rappelant la symétrie TI. Comparant l'allure du réseau en section 2 et 3, on voit que la distribution des fissures semblent être identique quelque soit la hauteur de coupe. La section verticale (4) montre une fois encore, des fissures verticales.

La densité de fissure de la section verticale montre à nouveau très clairement la prédominance des fissures verticales. Dans les section horizontales on voit aussi bien clairement, une la distribution régulière des fissures quelque soit leur orientation. On remarque cette fois avec le Tableau 5, que la densité de fissure présente en section 1, 2 et 3 est la même. Ainsi bien que le réseau de la section 1 ait l'air d'être différent des autres sections, il présente tout de même une densité de fissure équivalente. Ceci est due au fait que la densité de fissure ne représente pas le nombre de fissure, ni leur volume mais bien le volume d'influence des fissures. Ainsi un réseau avec peu de fissures, mais plus grandes, peut compenser un réseau avec de nombreuses et petites fissures. On notera d'ailleurs que cette observation représente souvent un problème dans les études liées aux réservoirs. En effet, pour déterminer leur propriétés de transport ou leur réseau de fissure, la connaissance de la densité de fissure ne

suffit souvent pas.

Il existe des similarités entre ces trois échantillons :

- On voit toujours des effets de bords en section 1 présentant un réseau avec des fissures plus petites mais plus nombreuses
- Dans les section 4 on remarque toujours des longues fissures verticales et la densité de fissure obtenue montre cette anisotropie. Dans les sections horizontales une répartition des fissures homogène en fonction de leur orientation est observée. Ces deux points montrent une symétrie TI introduite dans chacun de ces échantillons.

On retient que pour chaque température de choc thermique, on obtient toujours une symétrie TI et des effets de bords (avec une répartition in-homogène de la densité de fissure ou simplement un réseau visuellement différent).

On remarque dans les sections 2 et 3 que le même motif de fissure semble apparaître pour les échantillon C11 et C18 fissuré thermiquement à 300 et 200°C. Ceci nous indique que les fissures vues en coupes horizontales sont des fissures qui traversent tout l'échantillon. Soit des fissures verticales. On suppose alors que la densité de fissure moyenne obtenue dans les coupes horizontales est la densité des fissures verticales globale à tout l'échantillon. Soit  $\alpha_1$ . Selon le même raisonnement, on suppose que dans la coupe verticale, toutes les fissures horizontales qui sont vues représentent la densité de fissure horizontale moyenne de tout l'échantillon. On obtient alors  $\alpha_3$ . La densité totale est calculée telle que  $\rho_c = \alpha_1 + 2\alpha_3$ , selon la symétrie TI. Pour ces trois échantillons, elles sont récapitulées dans le Tableau suivant.

Tableau 6 – **Densité de fissure globale obtenue pour les échantillons C19, C18 et C11.**  $\alpha_1$  : densité de fissure verticale,  $\alpha_3$  : densité de fissure horizontale,  $\rho_c$  : densité de fissure globale.

		$T_M$	$\alpha_1$	$\alpha_3$	$\rho_c$
Figure 34	C19	100°C	0,005	0,0007	0,006
Figure 35	C18	200°C	0,028	0,0016	0,031
Figure 36	C11	300°C	0,041	0,0032	0,047

À partir des observations des Figures 34 à 36 et des Tableaux 5 et 6, on remarque la principale différence entre ces trois échantillons : à mesure que la température du choc thermique diminue, le réseau de fissure est de moins en moins important et surtout de moins en moins homogène.

Grâce à ces observations on peut expliquer la création du réseau de fissures. La variation brutale de température crée des contraintes de tensions en surface [Ougier-Simonin

et al., 2011]. Ces contraintes vont nucléer des fissures aux bords. Les fissures se propagent ensuite pour relâcher les contraintes thermiques. Si ces contraintes ne sont pas assez importantes (choc à température plus faible), les fissures ne se propageront pas jusqu’au cœur de l’échantillon.

Ceci permet de déterminer la température optimale de choc thermique pour notre étude. Le choc thermique de 200° ne conduit pas à une distribution homogène (et encore moins à 100°C). Du point de vue du modèle d’endommagement, et de la méthode de NIA, si le réseau n’est pas homogène, la plupart des relations connues ne sont alors plus utilisables. Par ailleurs un choc de plus de 300°C conduit à la destruction de l’échantillon. Il s’en suit que 300°C est la température optimale pour la suite de notre étude.

### 2.1.3 Géométrie des fissures

P OUR le cas d’un échantillon traité à 300°C, la Figure 37 représente l’histogramme de la répartition des rayons des fissures.

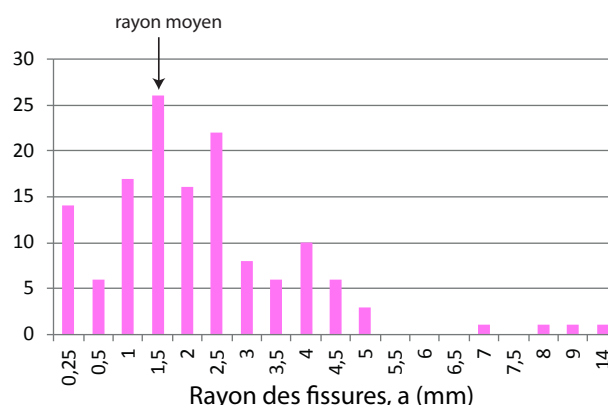


FIGURE 37 – **Histogramme de la répartition des rayons des fissures.** Échantillon fissuré par un choc thermique à 300°C.

Un rayon moyen de  $1,5 \text{ mm} \pm 0,5$  est obtenu. Par observation directe des fissures au MEB (comme avec les Figures 32), on voit une ouverture allant de 1 à 20  $\mu\text{m}$ . Soit un facteur de forme compris entre  $10^{-2}$  et  $10^{-3}$  (limite supérieure). On remarque aussi la géométrie plutôt plane de nos fissures.

## 2.2 Par mesure des vitesses des ondes élastiques

LES mesures de vitesses des ondes élastiques n'ont pas pu être réalisées hors cellule triaxiale. En effet à pression ambiante, les contacts entre le verre fissuré et les capteurs piézoélectriques ne nous permettent pas d'obtenir une visualisation correcte des ondes. Le piquage des temps d'arrivée n'est alors pas possible. Un échantillon fissuré thermiquement à 300°C a donc été placé dans la cellule triaxiale et les vitesses des ondes P et S ont été mesurées avec une augmentation de la pression hydrostatique. La Figure 38 montre l'évolution des vitesses  $V_P(0^\circ)$ ,  $V_P(90^\circ)$ ,  $V_{SV}$  et  $V_{SH}$  avec la pression de confinement. La vitesse à pression nulle n'est malheureusement pas mesurable même dans la cellule à cause du contact des capteurs. Ceci indique peut-être la présence d'une zone micro-fissurée et écaillée au bord de l'échantillon. Cette zone très fine expliquerait les défauts de contact sans pression de confinement appliquée.

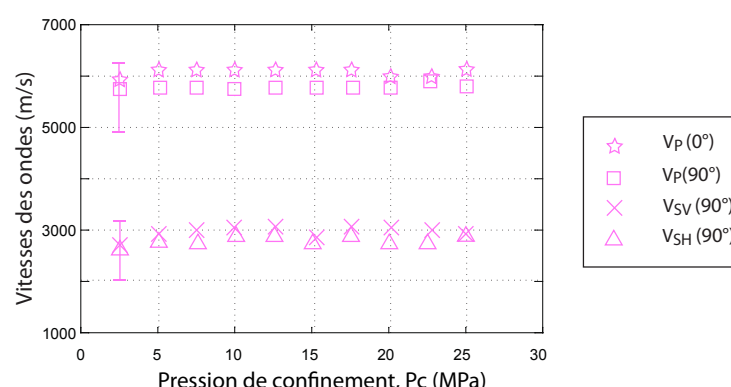


FIGURE 38 – Vitesses des ondes élastiques (en condition hydrostatique) d'un échantillon fissuré par un choc thermique de 300°C en fonction de la pression de confinement. Vitesses  $V_P(0^\circ)$ ,  $V_P(90^\circ)$ ,  $V_{SV}(90^\circ)$  et  $V_{SH}(90^\circ)$ .

Dans le cas sec, le tenseur de souplesse  $\mathbf{S}$  peut-être simplifié en négligeant le terme  $\beta$ . Ainsi le tenseur de densité de fissure  $\alpha$  est caractérisé par cinq paramètres indépendants : ses trois principaux composants,  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  et  $\alpha_3$ , et  $E_0$  et  $\nu_0$ . De part notre symétrie cylindrique et TI,  $\alpha_2 = \alpha_3$ . Ainsi le nombre de constantes indépendantes est réduit à quatre. On obtient les quatre mesures de vitesses à 5 MPa de pression de confinement. Cette valeur de pression est faible mais suffisante pour avoir de bons contacts et une bonne mesure de vitesse. À pression de confinement plus faible, des mesures ont pu être réalisées, mais l'erreur est très importante du fait d'une grande dispersion de la mesure. On suppose que cette pression faible n'a pas d'influence sur les fissures. On obtient donc les valeurs de vitesses suivantes :



$$\left\{ \begin{array}{l} V_P(0^\circ) = 6100 \text{ m/s} \\ V_P(90^\circ) = 5750 \text{ m/s} \\ V_{SV}(90^\circ) = 2980 \text{ m/s} \\ V_{SH}(90^\circ) = 2900 \text{ m/s} \end{array} \right. \quad (44)$$

Les composants du tenseur de souplesse simplifié ont été décrits par Kachanov [1980, 1992] puis repris par Guéguen and Kachanov [2011] :

$$\left\{ \begin{array}{l} S_{11} = \frac{1}{E_0} + h\alpha_1 \\ S_{33} = \frac{1}{E_0} + h\alpha_3 \\ S_{44} = \frac{1+\nu_0}{2E_0} + \frac{h}{2}\alpha_1 \\ S_{66} = \frac{1+\nu_0}{2E_0} + \frac{h}{4}(\alpha_1 + \alpha_3) \end{array} \right. \quad (45)$$

où

$$h = \frac{32(1 - \nu_0^2)}{3(2 - \nu_0)E_0} . \quad (46)$$

Les composants du tenseur de rigidité et donc de souplesse sont obtenus à partir des mesures de vitesses. On en déduit les valeurs de densité de fissure :  $\alpha_1=0,038$  et  $\alpha_3=0,0037$ . La densité de fissure globale est alors de  $\rho_c = \alpha_1 + 2\alpha_3=0,045$ . Les vitesses étant données avec une précision de 50 m/s, les densités de fissure sont connues avec une précision de 12%.

## Comparaison des deux approches

Le Tableau suivant récapitule les densités de fissure obtenues pour un échantillon fissuré par un choc thermique à 300°C.

Tableau 7 – **Densité de fissure verticale,  $\alpha_1$ , horizontale,  $\alpha_3$  et densité globale,  $\rho_c$ .** Pour un échantillon fissuré par un choc thermique de 300°C.

	par microstructure	par inversion des vitesses
$\alpha_1$	0,041	$0,038 \pm 0,004$
$\alpha_3$	0,0032	$0,0037 \pm 0,0004$
$\rho_c$	0,047	$0,045 \pm 0,005$

Les densités de fissure obtenues par observations microstructurales et par inversion des données des vitesses des ondes élastiques sont en très bonne corrélation. Ces résultats sont cependant obtenues en utilisant certaines approximations théoriques notamment avec l'hypothèse NIA. Les résultats de Grechka and Kachanov [2006a,b] montrent que cette hypothèse est correcte jusqu'à une valeur de densité de fissure de 0,14. Ce que nous pouvons valider ici.

Des valeurs de densité plus élevées ne peuvent être étudiées car les chocs thermiques à  $T_M > 300^\circ\text{C}$  entraînent la rupture de l'échantillon [Ougier-Simonin et al., 2011]. Nous étudierons plus loin des verres fissurés thermiquement puis endommagés lors d'expérience de fluage. Nous verrons alors la limite de l'application de cette méthode de NIA.

UN choc thermique brutal sur des échantillons de verre chauds, crée des fissures. Ces fissures se propagent ensuite en mode I, dans tout l'échantillon. La géométrie des fissures obtenues est un réseau de petites fissures très nombreuses formant des pentagones ou des hexagones dans le plan horizontal, sur la surface, et un réseau de fissures verticales découpant des colonnes à l'intérieur.

**En aparté : analogies avec des formations naturelles.** Il est possible de trouver des analogues naturels au réseau de fissures décrit ici. En effet, aux bords d'une rivière asséchée on voit des fissures qui apparaissent avec des formes géométriques proches du pentagone/hexagone. On peut également comparer notre réseau au résultat d'une coulée de lave qui donne après un refroidissement brutal au contact de l'eau, des orgues basaltiques bien visibles, par exemple, en Irlande à la Chaussée des Géants.



d'après notre étude, ces observations s'expliquent par un "choc" hydrique ou thermique de symétrie TI.

En fonction de la température du choc thermique, le réseau est plus ou moins développé. Pour un choc thermique de 300°C, le réseau ainsi formé présente une répartition homogène,

une géométrie transverse isotrope et une densité de fissure globale de  $\rho_c=0,047$ .

Sur ce même genre d'échantillon placé dans la cellule triaxiale, des mesures de vitesse ont été réalisées à faible pression de confinement. Quatre mesures sont nécessaires pour décrire les propriétés élastiques du verre fissuré et pour calculer la densité de fissure. On trouve une valeur de  $\rho_c=0,045 \pm 0,005$ . La comparaison avec les mesures indépendantes réalisées par la microscopie nous permet de valider le modèle d'endommagement et de pouvoir l'utiliser dans la suite de notre étude.

On note lors des observations de fissures, un rayon moyen de 1,5 mm et un facteur de forme compris entre  $10^{-2}$  et  $10^{-3}$  au maximum.

CETTE partie a fait l'objet d'une publication dans *International Journal of Fracture* en 2013, dans la section lettre. Cette publication : "Effective Elastic Properties of Cracked Solids : an Experimental check" présente la description du réseau de fissure introduit à 300°C et montre la comparaison entre la densité de fissure obtenue par la microstructure et par la méthode issue de l'hypothèse NIA.

Cette publication est joint ici en annexe de cette partie.

## EFFECTIVE ELASTIC PROPERTIES OF CRACKED SOLIDS: AN EXPERIMENTAL INVESTIGATION

*Céline Mallet, Jérôme Fortin, Yves Guéguen and Frédéric Bouyer*

*Laboratoire de Géologie, Ecole Normale Supérieure, CNRS, UMR 8538, Paris, France  
mail: mallet@geologie.ens.fr*

**Abstract.** Non Interaction Approximation (NIA) is currently used to relate effective elastic moduli to crack density. It also allows one to identify the anisotropy of the crack network.

We investigated thermally cracked glass sample and quantified the crack network (using SEM). From elastic wave velocity measurements, using EMT, we obtained the crack densities:  $\alpha_1=0.038$  (horizontal one) and  $\alpha_3=0.0037$  (vertical one).

From SEM observations and image processing we could identify all cracks, count them and determine independently the crack density. These results agree with the previously determined ones from the elastic wave velocity measurements (within a small uncertainty range).

These results indicate that the NIA is quite accurate in the considered range of crack densities, and elastic wave velocity measurements can provide reliable information on their crack distribution and crack density.

**Keywords:** Damaged materials, Elastic wave velocities, Effective medium model, Crack network.

**1. Introduction.** Failure of brittle materials such as glass or rocks results from nucleation and propagation of cracks. Cracks modify also the elastic properties. Kachanov (1980) introduced the crack density tensor, a generalization of the scalar crack density first introduced by Bristow (1960), to quantify the effect of cracks on elastic properties. The scalar crack density is adequate in the isotropic case. For identical penny shaped cracks of radius  $a$ , its value is  $\rho_c=Na^3/V_T$  if  $N$  is the number of cracks in the volume  $V_T$ . If cracks have different radii,  $\rho_c=\Sigma_i(a_i^3)/V_T$ .

Experimental results have shown that elastic wave velocities are lower in the presence of cracks (Walsh, 1965). Using Effective Medium Theory and in particular the Non-Interaction Approximation, elastic wave velocities can be interpreted in terms of crack density (Schoenberg, 1980, Sayers and Kachanov, 1995). In the case of an anisotropic medium, the components of the stiffness tensor can be derived from the velocities. Many experimental results on granite (Pratt et al., 1977) or basalt (Vinciguerra et al., 2005, Adelinet et al., 2011, Fortin et al., 2011, Nara et al., 2011) have been interpreted in such a way.

Direct and independent measurements of crack density from Scanning Electron Microscope (SEM) would be welcome to validate the EMT results. Unfortunately, such measurements are not in general available for rocks. This is due to three reasons. First, a reliable estimate of crack size appears to be difficult to obtain. This is due to features such as grain boundaries. Second, the crack network can be modified when the sample is unloaded, in particular if cracks are introduced at high pressure (Fortin et al., 2007). Finally, crack shapes strongly affect the predictions, in addition, the information on them is difficult to obtain, and their quantitative analyses are difficult (although some progress has been made in this direction, (Mear et al., 2007)).

For these reasons, we choose to document crack network and crack density on thermally cracked glass sample. Because of the perfect amorphous structure of initial glass sample, when cracks are introduced, the estimation of their size is possible and the crack shape can be well observed. Also,

cracks have been introduced at room pressure through thermal shocks that prevents artefacts due to unloading of the sample.

We first determine the crack density from elastic wave measurements in the Non-Interaction Approximation. Then, we use microstructural observations to infer independently the crack density. Finally, we discuss how both results can be compared.

## 2. Methodology.

**2.1. Original samples and thermal shock.** Original borosilicate glass samples were synthesized by the French Atomic Energy Commission (CEA) laboratory by a reproducible method, under conditions of slow cooling that prevent any crack formation. We used cylinders of 80mm length and 40mm diameter.

Cracks were introduced in the intact samples by thermal shocking (Ougier-Simonin et al., 2010, Ougier-Simonin et al., 2011). Glass samples were heated in an oven at 1°C/min up to 300°C, kept at this constant temperature during 2 hours and then, quenched in less than 5s into water at room temperature.

It is expected that cracks will nucleate near the sample boundaries due to the high (non-linear) thermal gradient introduced there. However, as discussed below, cracks not only nucleate but propagate. So mostly vertical cracks are expected.

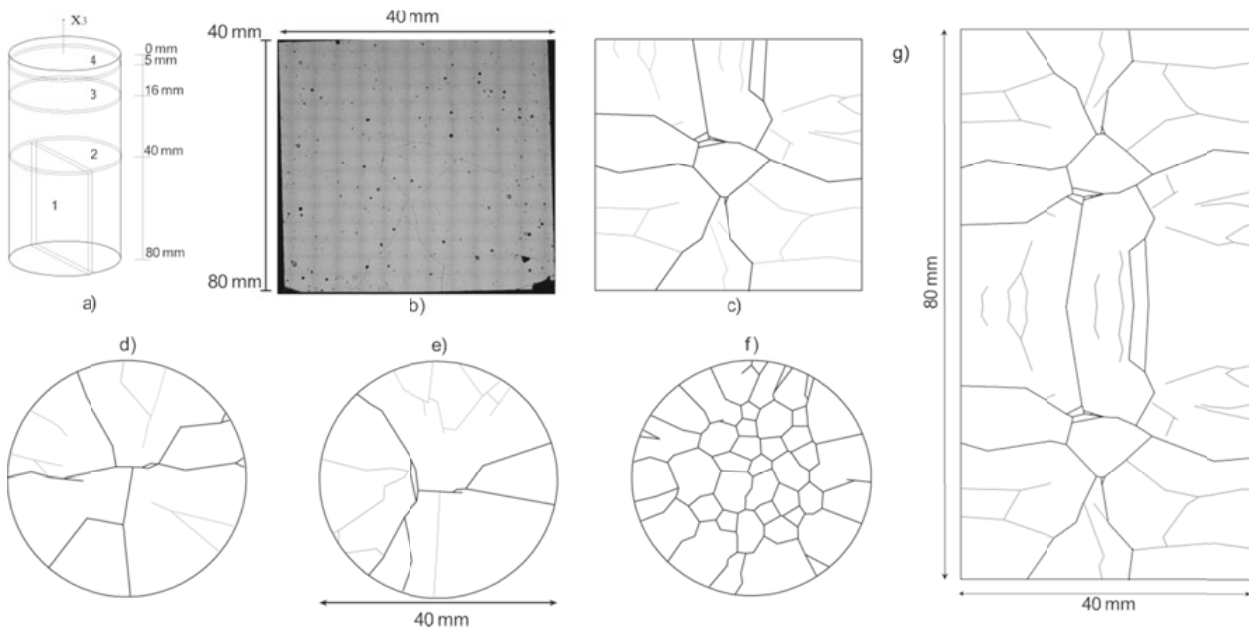
**2.2. Elastic wave measurements.** Elastic wave velocities of cracked samples have been measured in triaxial cell. 16 ultrasonic piezoelectric sensor were glued directly onto the sample surface. In active mode, a pulse of 250 V is generated and transmitted to one sensor. The electrical pulse triggers a mechanical vibration that propagates into the medium. The other 15 sensors receive this vibration and transform it into an electrical signal that is amplified at 40 dB. Signals are recorded (Schubnel et al., 2006, Ougier-Simonin et al., 2010), and by measuring the travel time of the elastic pulse through the sample for a known path length, elastic wave velocities are obtained (Birch, 1960, Yin, 1992). We used compressional (P) and shear (S) wave sensors to get the P- and S-wave velocities (Fortin et al., 2006). P sensors were glued at different orientations to get the velocity along the radial axis and the vertical axis. For S waves, one pair of S sensor was oriented in a horizontal direction for measuring  $S_H$ , and a second pair was oriented in the vertical direction for measuring  $S_V$ .

**2.3. Microstructural investigation.** To observe and document the crack network, four different thin sections were cut from one thermally cracked sample (Figure 1a): a vertical plane section, in the lower half cylinder, and three horizontal plane sections, one at the top of the sample (at 5 mm from the top), one at 16 mm from the top, and the last one in the middle of the sample (at 40 mm from the top).

Crack sizes, crack densities and crack shapes have been investigated on these four sections using a SEM. Images were made with a magnification of x 60. Then, the mosaic picture of the entire surface was reconstituted by pasting images end to end. Reconstructed SEM image of the vertical plane is shown on Figure 1b.

Two distinct groups of defects are highlighted: bubbles (black dots) and cracks (thin lines). Using image processing, bubbles can be filtered out and the crack network appears more clearly. A few small cracks are missed by the image processing. They can be added from visual direct observations. Then, both length and orientation can be obtained.

It has to be noticed that even if most cracks are linear, a few of them deviate from a straight line by small angles. We assume that if the angle is less than  $10^\circ$ , a crack is treated as a single one. Figures 1c,d,e,f show the crack network obtained from image processing on the four investigated sections.



**Figure 1.** Observation of the crack network. Thin sections are obtained in a thermally cracked sample : (a) position of the vertical section in the lower half cylinder, and position of the three horizontal sections. (b) SEM mosaic in the vertical thin section. (c) image processing of (b). (d) image processing of the horizontal section in the sample center. (e) image processing of the horizontal section at 16mm from the top. (f) image processing of the horizontal section at 5mm from the sample end. (g) Full sample vertical section reconstructed by symmetry.

### 3. Elastic wave velocity data and effective medium model.

**3.1. Elastic wave results.** Results are given with an accuracy of  $\pm 50$  m/s. Velocities are measured at a confining pressure of 10 MPa. This pressure value is low so that the pressure effect is weak, but sufficient to get good contacts with transducers. The measured elastic wave velocities are:

$$\begin{cases} V_{P_{axial}}(0^\circ) = 6100 \text{ m / s} \\ V_{P_{radial}}(90^\circ) = 5750 \text{ m / s} \\ V_{SV}(90^\circ) = 2980 \text{ m / s} \\ V_{SH}(90^\circ) = 2900 \text{ m / s} \end{cases} \quad (1)$$

**3.2. Non-interaction approximation.** The effective compliances are derived from the velocities. Assuming a Transversely Isotropic (TI) symmetry (this assumption is checked below), only 5 independent elastic constants have to be considered. If the TI anisotropy is caused by cracks, these 5 constants depend only on 4 parameters (Guéguen and Kachanov, 2011). So only 4 velocity measurements are required:



$$\begin{cases} C_{1111} = \rho V_{11}^2 \\ C_{3333} = \rho V_{33}^2 \\ C_{1212} = \rho V_{12}^2 \\ C_{1313} = \rho V_{13}^2 \end{cases} \quad (2)$$

where  $\rho$  is the glass density and  $V_{ij}$  is the elastic wave velocity along the  $i$ -axis and polarized along the  $j$ -axis. It means for example that  $V_{13}=V_{SV}$ , the S elastic wave, propagating horizontally and vertically polarized (Sayers and Kachanov, 1995).

Compliance tensor is the inverse of the stiffness tensor. Compliance components  $S_{ijkl}$  are related to crack density through effective medium theory. In the Non-Interaction Approximation (NIA), from Kachanov (1980) the extra compliances due to cracks is:

$$\Delta S_{ijkl} = \square \left[ \frac{1}{4} (\delta_{ik} \alpha_{jl} + \delta_{il} \alpha_{jk} + \delta_{jk} \alpha_{il} + \delta_{jl} \alpha_{ik}) - \frac{v_0}{2} \beta_{ijkl} \right] \quad (3)$$

where,

$$h = \frac{32(1-v_0^2)}{3(2-v_0)E_0} \quad (4)$$

In this equation,  $E_0$  and  $v_0$  represent the Young modulus and the Poisson ratio of the intact glass matrix.  $\alpha$  and  $\beta$  are the crack density tensors. The second rank crack density tensor is  $\alpha = 1/V \Sigma_m (a^3 \mathbf{nn})^{(m)}$ , and the fourth rank tensor is  $\beta = 1/V \Sigma_m (a^3 \mathbf{nnnn})^{(m)}$  (where  $a^{(m)}$  is the length of the  $(m)$  crack and  $\mathbf{n}$  its normal. The contribution of the beta-term is usually quite small except for the case of fluid-filled cracks where this term needs to be revised and its contribution may, in certain cases, become large (Kachanov, 1993). Retaining  $\alpha$  as the sole crack density parameter is an acceptable approximation in dry case (Kachanov, 1980, Kachanov, 1992, Guéguen and Kachanov, 2011).

Tensor  $\alpha$  is a second rank tensor, characterized by its three principal values,  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  and,  $\alpha_3$ . Note that in this case, the crack density is  $\rho_c = \alpha_1 + \alpha_2 + \alpha_3$ . The elastic constants depend on 5 parameters:  $E_0$ ,  $v_0$ ,  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  and,  $\alpha_3$ . In addition,  $\alpha_1 = \alpha_2$  so that the number of independent constants is reduced to four.  $\alpha_1$  corresponds to the vertical crack density and  $\alpha_3$  is the horizontal crack density.

Then, the overall compliances are given by Guéguen and Kachanov (2011):

$$\begin{cases} S_{1111} = \frac{1}{E_0} + h\alpha_1 \\ S_{3333} = \frac{1}{E_0} + h\alpha_3 \\ S_{1212} = \frac{1+v_0}{2E_0} + \frac{h}{2}\alpha_1 \\ S_{1313} = \frac{1+v_0}{2E_0} + \frac{h}{4}(\alpha_1 + \alpha_3) \end{cases} \quad (5)$$

For our sample, glass density is 2850Kg/m<sup>3</sup>. The intact sample Young's modulus and Poisson ratio are obtained from a constant strain rate test on an intact glass sample. They are equal to:  $E_0=80$ GPa,  $v_0=0.30$ . From the above data, the previous model gives:  $\alpha_1=0.038$ ,  $\alpha_3=0.0037$ , leading to  $\rho_c=0.045$  (see Table 1, section 4.3).

Velocities are given with an accuracy of 50m/s. We can thus infer that crack densities are known to within 12%.

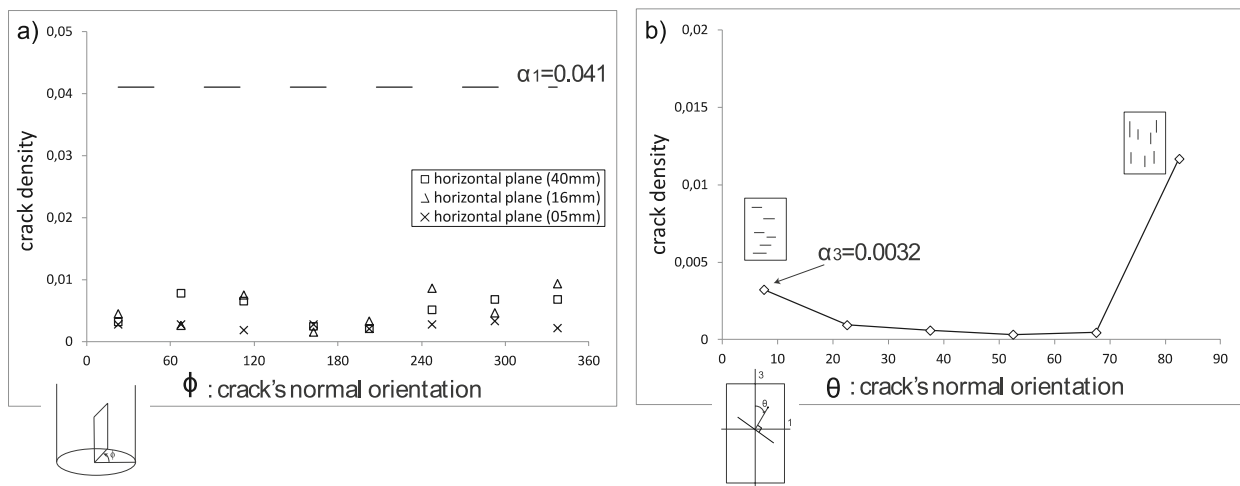
#### 4. Microstructural observations and interpretation.

**4.1. Cracks shape and distribution.** Near the cylinder top and bottom ends and around the lateral boundary cracks are expected to nucleate as consequence of thermal shock. An unexpected result is that crack distribution is more homogeneous than the thermal shock would predict (Figures 1c, d, e), if crack nucleation alone was considered. The main boundary effect is observed at the cylinder ends (Figure 1f) where cracks are smaller and more numerous. Note that in this case, the TI symmetry can be applied as the crack network is approximately hexagonal.

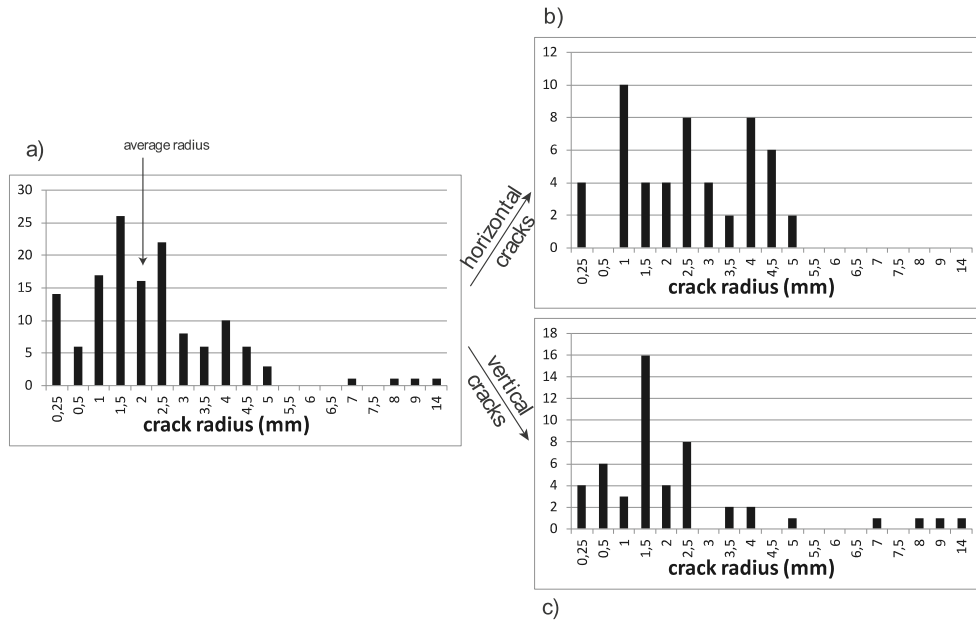
The central part of the sample corresponds to Figures 1c, d, e. The crack network has an axial symmetry and as shown below obeys the TI symmetry. This results from the process -quenching- by which cracks are created. For the same reason, the crack network must have the horizontal mid-cylinder plane as a mirror plane. Based on this assumption, an overall vertical section picture is obtained (Figure 1g). As noted above, if crack nucleation only took place, cracks would be mostly present near the boundaries. This was the expected micro-structure (Ougier-Simonin et al., 2011). However it is clearly not what we observed. The implication is that cracks propagate from the external boundary (where they nucleate) up to the cylinder center.

**4.2. Length and orientation: measurements of crack density.** From Figure 1, it is possible to get the horizontal crack density  $\alpha_3$  and the vertical crack density  $\alpha_1$ . Figure 2a is obtained from the analysis of horizontal sections (Figures 1d, e, f) and shows the evolution of the vertical crack density  $\alpha_1$  as a function of the azimuthal angle  $\phi$  by angular classes of  $45^\circ$ . As expected,  $\alpha_1$  does not vary with  $\phi$ , the horizontal plane is an "isotropic plane". The overall value of  $\alpha_1$  obtained from Figures 1d,e,f is  $\alpha_1=0.041$  (table 1). Horizontal thin sections show the vertical cracks intersections, which are the most important ones.

Let us now examine Figure 1g. Crack radius distribution (Figure 3) is measured on the vertical thin section (Figure 1g) in the entire surface. A few large cracks are found with a radius from 5mm to 14mm. The average radius value is 2.0mm.



**Figure 2.** (a) Crack density for Figure 1d,e,f. Cracks are grouped according to their orientation, by angular families of  $45^\circ$ . Then for each group crack density is calculated. The dashed line at 0.041 represents vertical crack density,  $\alpha_1$  calculated taking into account all the cracks present on a horizontal section (averaged for the three horizontal sections). (b) Crack density for Figure 3. Cracks are grouped by angular families of  $15^\circ$ . For each group crack density is calculated.



**Figure 3.** (a) Histogram representing the counting of all the crack radii on the vertical section (Figure 1g). (b) histogram for the vertical and sub-vertical cracks (cracks with a normal oriented between  $60\text{--}90^\circ$ ). (c) Histogram for horizontal and sub-horizontal cracks (cracks with a normal oriented between  $0\text{--}30^\circ$ ).

The distribution is anisotropic and Figure 3a can be split into two crack families: vertical cracks and horizontal cracks. Both horizontal and vertical families are defined by a  $30^\circ$  angle range. Note that vertical cracks are longer than horizontal ones (Figures 3b and c). As for horizontal planes, crack density can be obtained for the vertical plane taking into account the crack orientation. This result is shown in Figure 2b. Using Figure 3a, the overall crack density  $\rho_c$  is found to be 0.017 if the total volume of the cylinder is used. However, considering the volume  $V_T$  of the entire sample is not appropriate since the vertical plane of Figure 1g represents only a fraction  $f$  of  $V_T$ . Therefore,  $\rho_c = 0.017 m$  where  $m = 1/f$ . From Figure 3c, the vertical crack density is  $\alpha_1 = 0.012 m$ . From Figure 3b, the horizontal crack density is  $\alpha_3 = 0.0032$  (indeed all horizontal cracks are seen, thus there is no  $m$  factor). The crack network is clearly characteristic of a transverse isotropic medium. Comparing the overall results of Figures 2a and b, we get  $m = 3.4$ .

**4.3. Discussion.** Table 1 summarizes crack density results. The accuracy is 12%. Crack densities obtained from microstructural observations and from elastic wave velocity measurements are in very good agreement. These results are however obtained using several theoretical and experimental approximations.

**Table 1.** Crack densities  $\alpha_1$  (vertical cracks),  $\alpha_3$  (horizontal cracks) and global crack density  $\rho_c$ .

	Thin section measurements	elastic wave velocity inversion
$\alpha_1$	0.041	0.038+/-0.004
$\alpha_3$	0.0032	0.0037+/-0.0004
$\rho_c$	0.047	0.045+/-0.005

**NIA Assumptions.** Probably the most important assumption is the non-interaction approximation. The results of (Grechka and Kachanov, 2006a, 2006b) show that the NIA remains accurate at crack density lower than 0.14. In our case, crack densities are always less than 0.14. This basic assumption is therefore very appropriate and justified.

Another important assumption is that cracks are planar and disc-shaped. Observations made in orthogonal sections validate the important assumption of planar cracks. The disc-shaped assumption cannot be checked. But this assumption is less critical in the sense that equivalent circular cracks are in fact described by EMT (Guéguen and Kachanov, 2011). However, the numerical equivalence is unsolved.

Finally, the transversely isotropic assumption is very well confirmed from the above crack density angular dependence.

**Observation of vertical cracks in vertical section.** As examined in section 4.2 (Figure 2a),  $\alpha_1=0.041$  is deduced from Figures 1d,e,f measurements. This result is in agreement with measurements independently deduced from Figure 1g if  $m=3.4$ . The  $m$  factor has been defined as  $m=1/f$ , where  $f$  is the appropriate fraction of the total volume  $V_T$  to be used in determining crack density from Figure 1g. Factor  $f$  is such that  $0 < f < 1$  so that  $m \geq 1$ . Although it is difficult to calculate an exact value for  $f$ , examination of Figures 1d,e,f symmetry provides some indications. In the TI symmetry ( $\approx$  hexagonal symmetry), the crack network is invariant by a rotation of  $2\pi/6$  (i.e.  $\pi/3$ ) around the cylinder axis. This suggests that any observation in a vertical plane corresponds to 1/3 of the total crack numbers. From this argument, a value of  $m \approx 3$  is expected.

**Limits of applicability.** We are within the range of applicability of the Non-Interaction Approximation - that constitutes the approximation that is rigorously correct at low crack densities. However, this experimental investigation between microstructure analysis and velocity inversion would be even more valuable if it would be obtained for higher crack densities. Unfortunately, stronger thermal shocks lead to sample failure (Ougier-Simonin et al., 2010). Investigating the upper limit of the model could be done on other materials that support a higher crack density.

## 5. Conclusions

Elastic wave measurements and thin sections measurements have provided independently values of crack density (vertical cracks and horizontal ones) on cracked glass samples. These values agree reasonably well. The crack network is not perfectly homogeneous, but it is approximatively homogeneous. It has a transverse isotropic symmetry as expected. The Non-Interaction Approximation assumption is fulfilled. These results confirm the validity of this approximation and the potential use of elastic wave velocities to infer crack density.

## References

- Adelinet, M., C. Dorbath, M. Le Ravalec, J. Fortin, and Y. Guéguen (2011), Deriving microstructure and fluid state within the Icelandic crust from the inversion of tomography data, *J. geophys. Res.*, 38, 3.
- Birch, F. (1960), The velocity of compressional waves in rocks to 10 kilobars, part 1, *Journal of Applied Mechanics*, 65, 1083–1102.
- Bristow, J. (1960), Microcracks, and the static and dynamic elastic constants of annealed and heavily cold-worked metals, *British Journal of Applied Physics*, 11, no 2, p. 81.

- Fortin, J., S. Stanchits, G. Dresen, and Y. Guéguen (2006), Acoustic emission and velocities associated with the formation of compaction bands in sandstone, *Journal of Geophysical Research*, 111(B10), doi:10.1029/2005JB003854.
- Fortin, J., Y. Guéguen, and A. Schubnel (2007), Effects of pore collapse and grain crushing on ultrasonic velocities and  $v_p/v_s$ , *Journal of geophysical research*, 112, doi:10.129/2005JB004005.
- Fortin, J., S. Stanchits, S. Vinciguerra, and Y. Guéguen (2011), Influence of thermal and mechanical cracks on permeability and elastic wave velocities in a basalt from mt. etna volcano subjected to elevated pressure, *Tectonophysics*, 503(1), 60–74.
- Grechka, V., and M. Kachanov (2006a), Effective elasticity of rocks with closely spaced and intersecting cracks, *Geophysics*, 71(3), D85–D91.
- Grechka, V., and M. Kachanov (2006b), Effective elasticity of fractured rocks: A snapshot of the work in progress, *Geophysics*, 71(6), W45–W58.
- Guéguen, Y., and M. Kachanov (2011), Effective elastic properties of cracked rocks - an overview, in, mechanics of crustal rocks, *CISM Courses and Lectures, Volume 533*, 73–125.
- Kachanov, M. (1980), Continuum model of medium with cracks, *Journal of the engineering mechanics division*, 106, 1039–1051.
- Kachanov, M. (1992), Effective elastic properties of cracked solids, *Appl Mech Rev*, 45(8).
- Kachanov, M. (1993), Elastic solids with many cracks and related problems, *Advances in applied mechanics*, 30, 259–445.
- Mear, M. E., I. Sevostianov, and M. Kachanov (2007), Elastic compliances of non-flat cracks, *International Journal of Solids and Structures*, 44(20), 6412–6427.
- Nara, Y., P. G. Meredith, T. Yoneda, and K. Kaneko (2011), Influence of macro-fractures and microfractures on permeability and elastic wave velocities in basalt at elevated pressure, *Tectonophysics*, 503(1), 52–59.
- Ougier-Simonin, A., J. Fortin, Y. Guéguen, A. Schubnel, and F. Bouyer (2010), Cracks in glass under triaxial conditions, *International Journal of Engineering Science*, 49, 105–121.
- Ougier-Simonin, A., Y. Guéguen, J. Fortin, A. Schubnel, and F. Bouyer (2011), Permeability and elastic properties of cracked glass under pressure, *Journal of geophysical research*, 116, doi:10.1029/2010JB008077.
- Pratt, H., H. Swolfs, W. Brace, A. Black, and J. Handin (1977), Elastic and transport properties of an in situ jointed granite, in *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, vol. 14, pp. 35–45, Elsevier.
- Sayers, C., and M. Kachanov (1995), Microcrack-induced elastic wave anisotropy of brittle rocks, *Journal of Geophysical Research*, 100(B3), 4149–4156.
- Schoenberg, M. (1980), Elastic wave behavior across linear slip interfaces, *The Journal of the Acoustical Society of America*, 68, 1516–1521.
- Schubnel, A., E. Walker, B. Thompson, J. Fortin, Y. Guéguen, and R. Young (2006), Transient creep, aseismic damage and slow failure in carrara marble 3 deformed across the brittle-ductile transition, *Geophysical Research Letters*, 33, doi:10.1029/2006GL026619.
- Vinciguerra, S., C. Trovato, P. Meredith, and P. Benson (2005), Relating seismic velocities, thermal cracking and permeability in mt. etna and iceland basalts, *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 42(7), 900–910.
- Walsh, J. (1965), The effect of cracks on the uniaxial elastic compression of rocks, *Journal of Geophysical Research*, 70(2), 399–411.
- Yin, H. (1992), Acoustic velocity and attenuation of rocks: isotropy, intrinsic anisotropy, and stressinduced anisotropy, Ph.D. thesis.



## Quatrième partie

# Déformations lentes et propagation sous-critique des fissures

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>85</b>
<b>2</b>	<b>Étude préliminaire du comportement du verre fissuré en déformation contrôlée</b>	<b>88</b>
2.1	Comportement mécanique . . . . .	88
2.2	Paramètres élastiques dynamiques et endommagement . . . . .	90
<b>3</b>	<b>Résultats expérimentaux en fluage secondaire</b>	<b>92</b>
3.1	Comportement en fluage (expérience C7) . . . . .	92
3.1.1	Résultats en déformation . . . . .	92
3.1.2	Vitesses des ondes et endommagement . . . . .	94
3.1.3	Taux d'émission acoustique - EA . . . . .	95
3.2	Effet des paramètres expérimentaux . . . . .	97
3.2.1	Contrainte différentielle . . . . .	97
3.2.2	Pression de confinement effective . . . . .	98
3.2.3	Température . . . . .	100
3.3	Longueur moyenne des fissures . . . . .	102
3.3.1	Lien entre déformation volumique et géométrie des fissures . . . . .	103
3.3.2	1ère approche par paramétrisation des données . . . . .	104
3.3.3	2ème approche par résolution numérique . . . . .	105
3.3.4	Comparaison des deux approches . . . . .	106

---

<b>4</b>	<b>Interprétation théorique du fluage secondaire</b>	<b>108</b>
4.1	Propagation sous-critique des fissures . . . . .	108
4.2	Géométrie des fissures et calcul de $K_I$ . . . . .	109
4.3	Prédiction théorique de la longueur des fissures . . . . .	112
4.4	Prédiction théorique des déformations . . . . .	114
4.4.1	Considérations énergétiques . . . . .	114
4.4.2	Prédiction des déformations . . . . .	115
4.5	Discussion du modèle . . . . .	117
4.5.1	Rugosité des fissures . . . . .	117
4.5.2	Sensibilité de l'énergie d'activation . . . . .	118
4.5.3	Extrapolation et prédiction à long terme . . . . .	119
<b>5</b>	<b>Comparaison du comportement du verre et de celui des roches</b>	<b>120</b>

---



L'OBJECTIF de ce second axe d'étude est d'observer les phénomènes lents dans le verre fissuré. Grâce au protocole décrit par Heap et al. [2009b, 2011] et précisé dans la partie Méthode de ce manuscrit, on peut observer le fluage lent de notre matériau. L'effet du temps est le point d'intérêt de cette partie.

Le fluage est un phénomène physique qui provoque la déformation d'un matériau quand il est soumis à une contrainte constante. Le matériau se déforme même pour des charges inférieures à sa limite élastique (à condition qu'elles soient appliquées pendant une durée suffisante). Les tests de fluage servent notamment à déterminer les propriétés dépendantes du temps, comme la dégradation ou le vieillissement des matériaux. Ces observations sont très importantes dans le domaine du génie civil, pour la durabilité des ouvrages, mais aussi dans le domaine des géosciences, pour l'étude de tous les phénomènes lents de déformation de la croûte. On décrit le fluage d'un matériau en trois phases. Lorsqu'un échantillon est soumis à une contrainte constante, celui-ci se déforme avec une vitesse de déformation qui varie avec le temps. Une première phase de décélération des déformations est observée. C'est le fluage primaire. Plus on avance dans le temps, plus la vitesse de déformation ralentit jusqu'à atteindre sa valeur minimale. On entre alors dans la phase du fluage secondaire caractérisée par une augmentation de déformation à vitesse constante au fil du temps. Cette phase correspond à un régime stationnaire au cours de laquelle l'endommagement se poursuit lentement. Au-delà d'un certain stade de déformation, la vitesse de déformation accélère. Il s'agit alors du fluage tertiaire. Cette ultime étape entraîne la rupture de l'échantillon.

Il est connu que certains effets, comme une circulation de fluide ou une température élevée, aggravent ces phénomènes en augmentant les vitesses de déformations (quelque soit la phase de fluage) et de ce fait, raccourcissent le temps à la rupture. Dans cette partie, nous

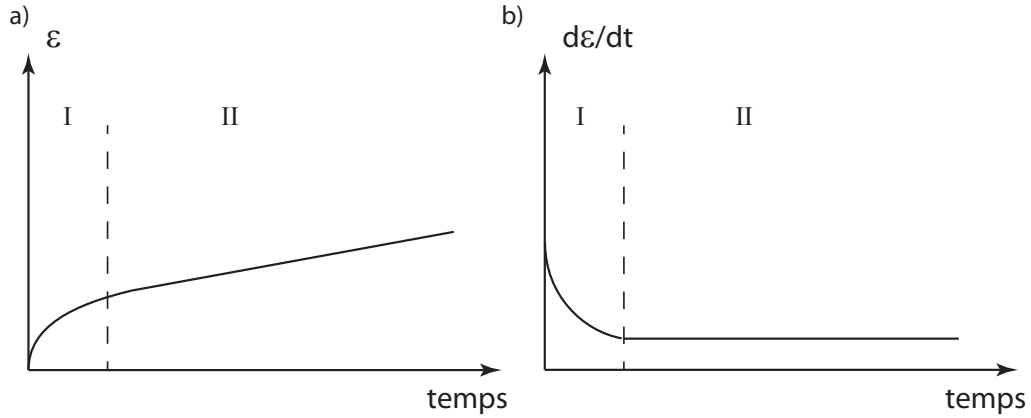


FIGURE 39 – **Courbes de fluage typiques présentant les deux premiers stades du fluage.** a) Déformation en fonction du temps à contrainte constante. b) Vitesse de déformation en fonction du temps à contrainte constante.

traitons uniquement le phénomène de déformation lente lié au fluage secondaire (Figure 39). Les phénomènes de rupture étant étudiés dans la partie suivante du manuscrit, le fluage tertiaire y sera alors décrit.

L’observation du fluage secondaire a été faite dans les métaux, céramiques et roches naturelles, notamment dans les grès [Lockner and Byerlee, 1977; Baud and Meredith, 1997; Heap et al., 2009b,a], le granit [Wu and Thomsen, 1975; Lockner, 1993, 1998; Fujii et al., 1999] ou encore le basalte [Swanson, 1984; Meredith and Atkinson, 1985; Nara et al., 2010; Heap et al., 2011], mais n’est pas documentée dans les verres. Pourtant, ce matériau présentant de multiples intérêts théoriques, il est primordial d’y décrire ces phénomènes.

Nous verrons dans un premier temps si le fluage peut être observé sur le verre. Ensuite, une étude micromécanique sera décrite pour comprendre ces phénomènes d’un point de vue théorique et proposer un modèle. Enfin, la comparaison au comportement des roches naturelles sera discutée.

Une étude expérimentale préliminaire est présentée en premier. Il s’agit de l’étude du comportement du verre fissuré, avec un traitement thermique (TT) à 300°C, suivant le protocole de rupture classique. Les expériences considérées sont répertoriées dans le Tableau suivant (8). Notons que les échantillons étant désormais fissurés, on va utiliser un fluide de pore à la pression de 5 MPa. On décrira alors les contraintes appliquées en termes de contraintes effectives :  $\sigma'_i$  telles que  $\sigma'_i = \sigma_i - P_P$  (et ce pour,  $i=1$  ou  $3$ , pour la contrainte axiale,  $\sigma_1$  et la contrainte de confinement,  $\sigma_3$ , qui deviennent donc  $\sigma'_1$  et  $\sigma'_3$ ). Les résultats seront toujours présentés en termes de  $Q$  ( $= \sigma'_1 - \sigma'_3$ ), la contrainte différentielle (sauf dans les cas où on cherche à mesurer le module de Young).

Tableau 8 – **Récapitulatifs des tests préliminaires de rupture réalisés.**

Échantillon	État de l'échantillon	$P_C$ (MPa)	Fluide de Pore	$\sigma'_3$ (MPa)	$Q_{max}$ (MPa)
R7T7_C9	TT 300°C	eau, $P_P=5$ MPa	20	25	465
R7T7_C4	TT 300°C	eau, $P_P=5$ MPa	10	15	350
R7T7_C12	TT 300°C	eau, $P_P=5$ MPa	5	10	170

La série d'expérience de fluage (Tableau 9) est réalisée sur des échantillons fissurés thermiquement à 300°C selon le protocole de fluage décrit dans la partie Méthode de ce mémoire. Les paramètres de pression sont répertoriés dans le Tableau 9. La première expérience (C7) réalisée à  $P_C=15$  MPa, saturée en eau minérale du commerce<sup>(1)</sup> et à température ambiante est considérée comme l'expérience de base. En la comparant aux trois autres, nous pourrions étudier les effets de la contrainte, de la pression de confinement et de la température.

Tableau 9 – **Récapitulatifs des tests de fluage réalisés.**

Échantillon	$P_C ; P_p$ (MPa)	$\sigma'_3$	Fluide de pore	Température
R7T7_C7	15 ; 5	eau	10	ambient
R7T7_C8	25 ; 5	eau	20	ambient
R7T7_C17	15 ; 5	eau	10	T=50°C
R7T7_C20	15 ; 5	eau	10	T=70°C

---

(1). ce fluide de pore est choisi pour être à l'équilibre chimique avec le verre évitant ainsi toute dissolution chimique du matériau.

## Étude préliminaire du comportement du verre fissuré en déformation contrôlée

UNE étude préliminaire est proposée afin de connaître le comportement du verre fissuré suivant le protocole de rupture classique (à taux de déformation fixé à  $2.10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ). Il s'agit ici, de décrire le comportement mécanique ainsi que les mesures de vitesses lorsque le paramètre temps n'est pas pris en compte.

### 2.1 Comportement mécanique

TROIS expériences sont comparées ici, réalisées à 10, 15 et 25 MPa de pression de confinement. Leur comportement mécanique est indiqué en Figure 40. On voit alors que le verre fissuré se déforme axialement de façon linéaire élastique sous chargement axial (Figure 40a). Avec ce graphique il est possible de mesurer les modules de Young. Ils sont récapitulés en Tableau 10. Deux modules pour chaque expérience sont mesurés. Les premiers sont obtenus à partir du tout début des déformations (de 0 à 0,05% de déformation). Les seconds modules sont issus de toute l'expérience.

Tableau 10 – **Mesure du module de Young en condition déviatorique.** Deux modules pour chaque expérience sont mesurés : Les premiers sont obtenus à partir du tout début des déformations (de 0 à 0,05% de déformation). Les seconds modules sont issus de toute l'expérience.

Échantillon	R7T7_C9, $\sigma'_3=5 \text{ MPa}$	R7T7_C4, $\sigma'_3=10 \text{ MPa}$	R7T7_C12, $\sigma'_3=20 \text{ MPa}$
$E_1 \text{ (GPa)}$	68,3	66,6	67,5
$E_2 \text{ (GPa)}$	62,8	66,3	62,5

La valeur des modules est différente entre la première et la seconde mesure. Le comportement n'est visiblement pas le même au-delà d'une certaine déformation. Cette remarque est cohérente avec le fait que des déformations de plus de 0,2% ne sont plus vraiment des déformations élastique. Finalement bien que le graphique nous montre un comportement linéaire, il n'est en fait pas vraiment élastique puisqu'on note une variation du module de Young. Dans la seconde mesure des modules, il y a une dispersion des résultats. Ce problème est résolu si on considère les premiers modules. Ainsi, on fixe, pour le verre fissuré,  $E_{stat}=67,5$  GPa.

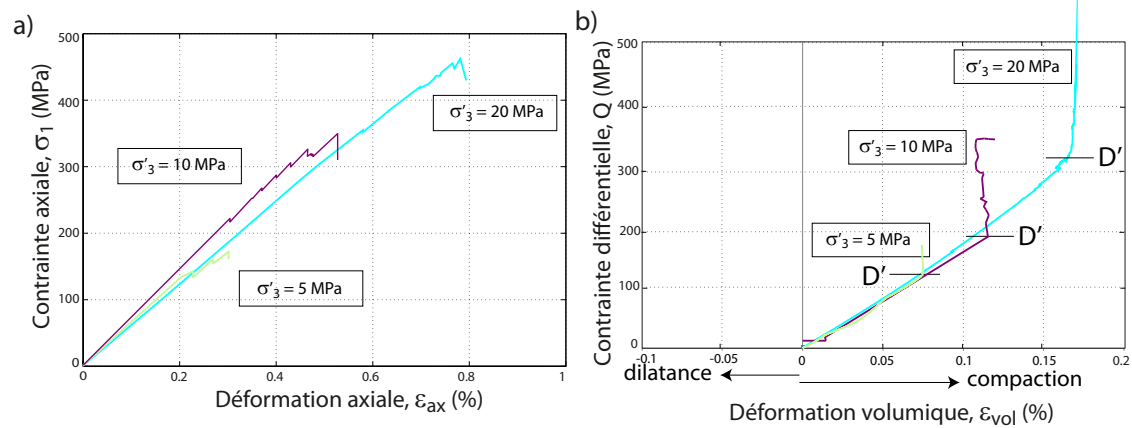


FIGURE 40 – **Comportement mécanique du verre fissuré pour trois expériences à trois pressions de confinement effectives différentes.** a) Déformation axiale en fonction de la contrainte axiale effective. b) Contrainte différentielle en fonction de la déformation volumique.

La déformation volumique que l'on calcule à partir des jauges axiales et radiales pour ces trois expériences est présentée en Figure 40b. De façon générale la réponse des verres fissurés au chargement axial n'est ni parfaitement linéaire ni ne montre une importante dilatance. Cette observation de dilatance renforce l'interprétation précédente considérant que le verre fissuré n'est pas vraiment élastique. La déformation volumique indique un premier mécanisme de compression jusqu'au seuil noté  $D'$  à partir duquel la dilatance apparaît sans toute fois dépasser l'effet précédent de compression. Ce seuil arrive à la contrainte différentielle de  $Q=120$  MPa pour  $\sigma'_3=5$  MPa,  $Q=190$  MPa pour  $\sigma'_3=10$  MPa et  $Q=320$  MPa pour  $\sigma'_3=20$  MPa.

## 2.2 Paramètres élastiques dynamiques et endommagement

L'EXPÉRIENCE C4 à pression de confinement effective de 10 MPa est considérée ici pour observer la variation des vitesses des ondes élastiques. La Figure 41a présente l'évolution des cinq vitesses des ondes élastiques au cours du chargement axial. Ces vitesses sont interprétées en termes de densité de fissure selon le modèle d'endommagement en considérant une symétrie TI (Figure 41b) <sup>(1)</sup>.

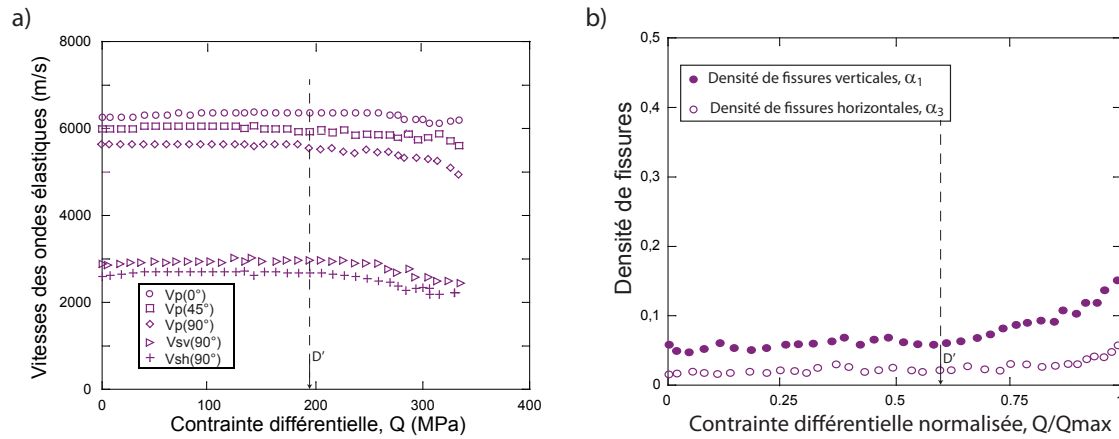


FIGURE 41 – À  $P_C=15$  MPa, évolution de l'endommagement pendant la montée en contrainte différentielle. a) Vitesses des ondes élastiques. b) Densités de fissure, verticale et horizontale, tracées en fonction de la contrainte différentielle normalisée par la valeur maximale atteinte. Le seuil de dilatance  $D'$ , observé avec la Figure 40b est indiqué ici par une flèche en pointillé.

Au cours du chargement, le comportement initial des vitesses est tout d'abord constant. Une fois le seuil de dilatance dépassé, les vitesses commencent à diminuer. Cette variation est liée à l'augmentation de la densité de fissure. L'anisotropie entre les vitesses des ondes P axiales et les vitesses des ondes P radiales augmente de plus en plus. En effet, la vitesse de l'onde P axiale reste constante à sa valeur initiale tandis que les vitesses des ondes P radiales et inclinées à  $45^\circ$  diminuent. On voit alors une augmentation de la densité de fissure verticale (valeur maximale atteinte : 0,15) tandis que la densité de fissure horizontale varie beaucoup moins.

La mesure des cinq vitesses des ondes élastiques permet d'obtenir la densité de fissure mais également le module de Young et coefficient de Poisson. La valeur de ces paramètres obtenus d'après les vitesses, est une mesure dynamique. Le Tableau 11 présente ces paramètres (ainsi que le rappel de la valeur mesurée en statique).

(1). malgré le caractère saturé de l'échantillon, seul les composants du tenseur  $\alpha$  sont représentés. Non pas que  $\beta$  soit négligeable mais il nous a semblé qu' $\alpha_1$  et  $\alpha_3$  facilitent mieux les interprétations en termes de fissuration. Cette représentation sera conservée pour toute la suite de l'étude.

Tableau 11 – **Modules de Young et coefficients de Poisson obtenus en conditions déviatoriques.** Comparaison des modules mesurés à l'aide des données en déformation axiale ( $E_{stat}$ ) avec ceux calculés à partir des vitesses des ondes élastiques ( $E_{dyna}$  - valeurs calculées au début de la montée en contrainte).

	R7T7_C9	R7T7_C4	R7T7_C12
$\sigma'_3$ (MPa)	5	10	20
$E_{stat}$ (GPa)	68,3	66,6	67,5
$\nu_{stat}$ (GPa)	0,31	0,30	0,34
$E_{dyna}$ (GPa)	46,5	47,3	48,2
$\nu_{dyna}$ (GPa)	0,34	0,35	0,37

Comme pour les modules statiques, les modules dynamiques ont été calculé à partir des vitesses initiales, celles correspondant au début de la déformation. On voit cependant une différence entre les modules statiques et dynamiques avec  $E_{dyna} < E_{stat}$ . Cette variation n'est pas habituelle mais peut se comprendre. En effet, l'anisotropie du milieu fausse les résultats dynamiques. Cette comparaison met en évidence l'incohérence d'essayer de décrire en isotrope notre matériau anisotrope. La mesure de  $E_{dyna}$  différente de celle obtenue dans le cas du verre sain (alors que les vitesses ont le même ordre de grandeur), renforce cette incohérence. Il faudrait pour être plus exact, considérer des modules de Young orienté.

## Résultats expérimentaux en fluage secondaire

### 3.1 Comportement en fluage (expérience C7)

D'ABORD, nous considérons l'expérience C7, correspondant aux paramètres expérimentaux que nous avons définis comme étant les paramètres de base ( $P_C=15$  MPa, échantillons saturés en eau minérale,  $P_P=5$  MPa, soit  $\sigma'_3=10$  MPa, température ambiante). Cette expérience est comparée à l'expérience C4 (test en rupture classique) et nous sert de référence pour comprendre le mécanisme de fluage. Nous verrons ensuite l'influence des paramètres expérimentaux, avec les expériences C8, C17 et C20 (Tableau 9).

Lors de l'expérience C7, le premier palier de contrainte est réalisé à  $Q=210$  MPa. Cette contrainte est au-delà du seuil de dilatance ( $D'$ ) tout en restant sous les 80% de la résistance maximale mesurée à cette pression de confinement effective ( $Q_{max}=350$  MPa, obtenu par C4). Ensuite, 8 paliers ont été nécessaires avant d'atteindre la rupture au cours du neuvième palier, à  $Q=295$  MPa. Les résultats de ces 8 premiers paliers sont présentés et discutés ici.

#### 3.1.1 Résultats en déformation

Sur le graphique de la Figure 42a, la déformation volumique est représentée en fonction du chargement axial. Le résultat lors de l'expérience C4 est rappelé en pointillé pour la comparaison. La courbe en trait plein représente le résultat pour l'expérience en fluage C7. Le premier palier est indiqué par P1. Les paliers suivants sont mis en évidence par les indications  $P_i$ . L'évolution de la déformation volumique au cours du temps est indiquée sur la Figure 42b. Le dernier palier n'est pas représenté en Figure 42b et est indiqué en pointillé sur la Figure 42a. Il sera précisé dans la partie suivante.

Dans la première partie du chargement, la réponse est élastique ( $0-D'$ ). Dans cette partie, la compression prédomine sur la dilatance. Au-delà de  $D'$  la dilatance apparaît et



devient petit à petit prédominante. On observe que la valeur de la contrainte différentielle, correspondant à  $D'$ , est  $Q=180$  MPa. Le premier palier a bien lieu au delà de ce seuil (à  $Q=210$  MPa). À chaque palier on voit que la dilatance augmente. La comparaison de l'évolution de la déformation volumique obtenue en fluage et en expérience à vitesse de déformation constante, montre que le fluage accroît la dilatance. À la fin de l'avant dernier palier, les déformations volumiques ont atteint la valeur de  $-0.4\%$ . On peut considérer une valeur de déformation moyenne à tous les paliers qui est alors de  $0,05\%$  de déformation par 24h.

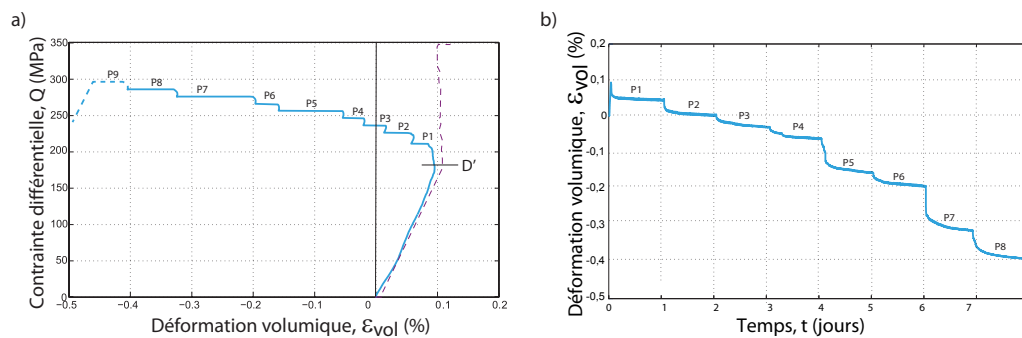
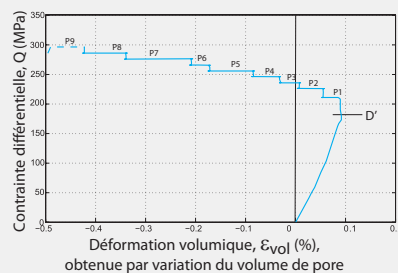


FIGURE 42 – **Déformation volumique en fluage (expérience C7).** a) Déformation volumique en fonction du chargement. Le trait en pointillé rappelle le résultat en test de rupture classique (expérience C4). Le dernier palier de fluage est représenté en pointillé. b) Déformation volumique au cours du temps. Le dernier palier de fluage n'est pas représenté ici.

**En aparté : comparaison des déformations volumiques obtenues par les jauges ou par la variation du volume de pore.** Dans la partie Méthode, nous avons précisé que les deux méthodes de mesures de la déformation volumique (jauge et variation du volume de pore) étaient équivalentes. La Figure suivante montre les déformations volumiques obtenues d'après la variation du volume de pore. La comparaison avec la Figure 42a montre que le comportement de l'échantillon est bien homogène même pour des déformations plus importantes.



Ces observations permettent de mettre en évidence l'effet du temps sur les déformations du verre : sous chargement constant, si on laisse le temps aux déformations de se développer,

une dilatance apparaît qui finit par prédominer largement sur la compression initiale de l'échantillon. Dans la littérature, ce phénomène est bien connu sous le terme “brittle creep” : fluage des matériaux fragiles [Atkinson, 1984; Atkinson and Meredith, 1987]. Il est ici mis en évidence dans le verre.

### 3.1.2 Vitesses des ondes et endommagement

DANS la Figure 43a sont représentées les vitesses des ondes élastiques en fonction du chargement axial pour l'expérience C7. Le seuil D' et le début des paliers successifs sont indiqués en abscisse.

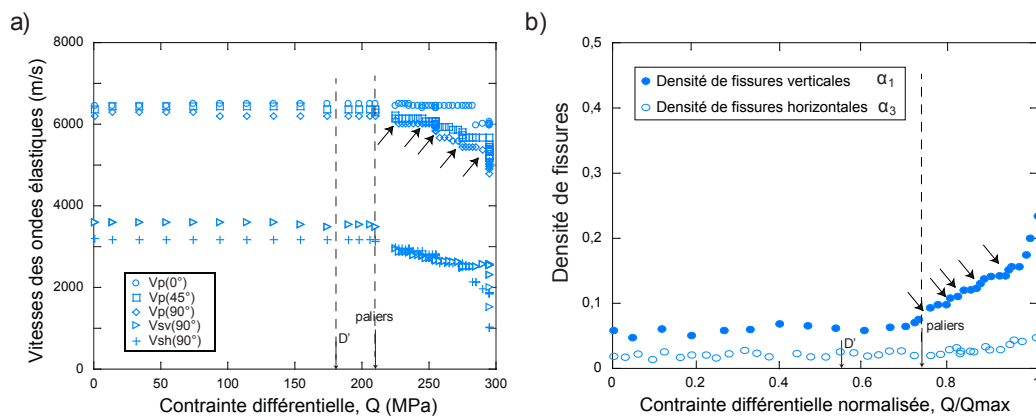


FIGURE 43 – **Suivi de l'endommagement en condition de fluage.** a) Vitesses des ondes élastiques lors du chargement. Le seuil D' et le début des paliers successifs sont indiqués en abscisse. De légères chutes de vitesses sont observées durant les paliers et sont mis en évidence par les flèches. b) Interprétation des vitesses en termes de densité de fissure. Les sauts de densité de fissure visibles durant les paliers sont mis en évidence par les flèches.

On observe que les vitesses suivent la distribution :  $V_P(0^\circ) > V_P(30^\circ) > V_P(45^\circ) > V_P(90^\circ) > V_{SV}(90^\circ) > V_{SH}(90^\circ)$ , comme dans les résultats des tests de rupture à vitesse de déformation constante (Figure 41a). Au début de l'expérience, sous le seuil D', les vitesses ont le même comportement : les valeurs restent dans la même gamme (vers 6000 m/s pour les ondes P et 3000 m/s pour les ondes S), l'anisotropie n'est pas très importante pour les ondes P. On note cependant un écart de 400 m/s pour les ondes S. En condition saturé ce n'est pas normal [Guéguen and Sarout, 2011]. Ceci peut provenir d'une saturation incomplète de l'échantillon au début de l'expérience. Quand le premier palier de fluage commence, les vitesses diminuent. L'anisotropie des ondes S s'annule montrant une saturation complétée de l'échantillon. L'anisotropie des ondes P quant à elle augmente. En effet les vitesses radiales diminuent tandis que les vitesses axiales ne varient pas (il y a alors un écart de 1400 m/s). Cette anisotropie traduit une propagation verticale des fissures. On remarque

que pendant les paliers il y a une diminution des vitesses. Elle se remarque par une petite chute (environ -150m/s). Cette variation ne se voit pas à chaque palier.

L'interprétation des vitesses en terme de densité de fissure est indiquée Figure 43b. On y voit l'augmentation de l'endommagement à chaque palier qui se traduit par une augmentation par saut de la densité de fissure. La densité de fissure est représentée en fonction de la contrainte différentielle normalisée par la valeur maximale atteinte afin de mieux la comparer aux résultats précédents (Figure 41b).

Par rapport aux essais à vitesse de déformation constante, on remarque ici que la densité de fissure verticale augmente plus vite et atteint une valeur plus importante (0,23 en fluage contre 0,15 en test à vitesse de déformation constante, expérience C4). Cependant on voit que la densité de fissure horizontale ne varie pas beaucoup et n'est pas très différente des résultats de l'expérience C4.

L'observation de ces résultats met en évidence l'augmentation de l'endommagement des échantillons en condition de fluage. Cet endommagement est anisotrope, soulignant une propagation verticale des fissures.

### 3.1.3 Taux d'émission acoustique - EA

LA Figure 44a représente le taux d'EA et les déformations volumiques (issues de la Figure 42b) de l'expérience C7 excepté pour le dernier palier. Ces données sont représentées au cours du temps. On note qu'à chaque palier, la phase de fluage initiale (fluage primaire) est toujours associée à un taux d'EA élevé. Le fluage secondaire présente un taux d'EA plus faible mais non-nul. Vers la fin de l'expérience (proche du dernier palier et donc de la rupture), le taux d'EA augmente et des pics d'EA apparaissent de plus en plus fréquemment. Un zoom sur un palier particulier est indiqué en Figure 44b. Il s'agit du cinquième palier à  $Q = 255$  MPa, soit 86% de  $Q_{max}$ . Sur ce graphique, on voit clairement les phases primaire et secondaire du fluage pour un palier. Le fluage primaire est associé à une vitesse de déformation élevée et un taux d'EA élevé qui diminue très vite (de 8 à 1 EA/s). Le fluage secondaire suit. Durant cette seconde phase, les déformations augmentent progressivement (à une vitesse de déformation constante). Le taux d'EA est aussi quasi-constant, autour d'1 EA/s. Cependant, des sauts de déformations peuvent apparaître. Ils correspondent à des pics d'EA. Un exemple de saut de déformation lié à un pic d'EA est visible sur le palier choisi, représenté en Figure 44b (flèches A).

On remarque que le zoom sur le palier choisi met en évidence de légères oscillations des déformations volumiques d'une période  $T=6.10^{-4}$  s. Ces oscillations sont corrélées avec la régulation de température de la pièce. Elles mettent en évidence la sensibilité du verre à la

température. Cette même observation a déjà été vue dans d'autres matériaux granulaires [Divoux et al., 2008].

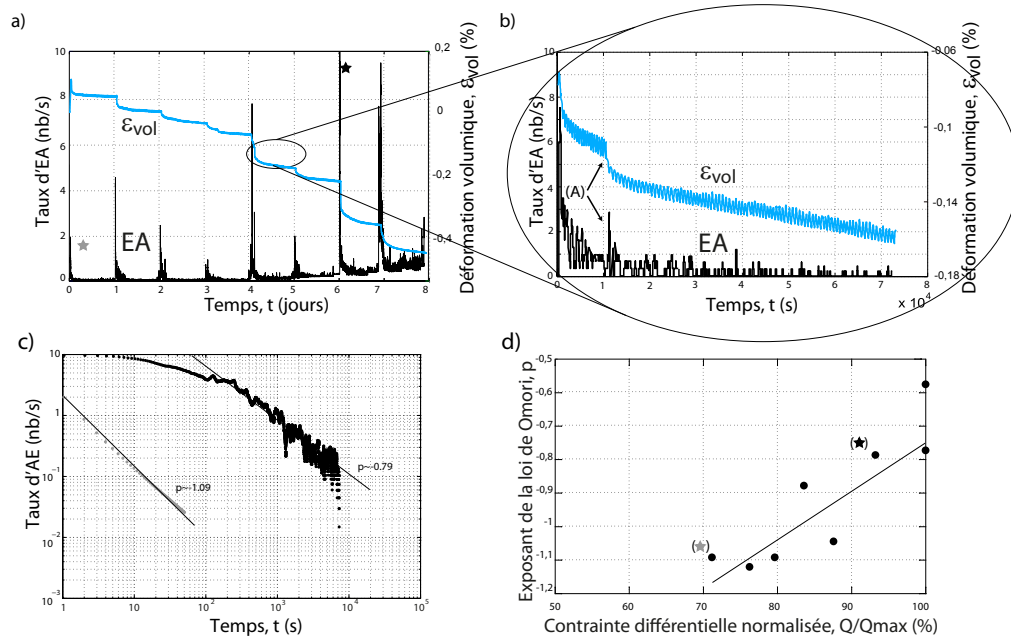


FIGURE 44 – **Taux d'EA pour l'expérience C7.** a) Déformation volumique et taux d'EA au cours du temps pour toute l'expérience (sans le dernier palier de rupture). b) Zoom sur un palier qui met en évidence le fluage primaire puis secondaire ainsi qu'un saut de déformation lié à un pic d'EA (flèches A). c) Pour deux évènements, taux d'EA après le pic principal en échelle logarithmique. Un exposant  $p$  caractérise la diminution de ce taux avec le temps. d) Evolution de  $p$  pour tous les évènements d'EA de début de palier en fonction de la contrainte différentielle normalisée.

Sur la Figure 44a, deux pics d'EA sont indiqués par une étoile. La grise est sur le premier pic (qui est un des plus petits) et la noire est sur le plus important. Ces deux évènements (étoiles grise et noire) sont observés en échelle logarithmique (Figure 44c) : on y voit le nombre d'EA après le pic (“aftershocks”), en fonction du temps. Les deux évènements suivent une loi puissance (loi de Omori), avec un exposant de -1.09 et -0.79. Finalement, une observation similaire peut être faite sur tous les pics d'EA et la Figure 44d représente la valeur de l'exposant de Omori en fonction de la contrainte différentielle. Une augmentation de cet exposant est visible (malgré une dispersion statistique importante). Cette augmentation de l'exposant de Omori avec l'endommagement est similaire à ce qui est observé dans des roches naturelles, notamment avec du grès [Ojala et al., 2003, 2004].

Ces résultats nous permettent de conclure que : (i) La dilatance est importante pendant les expériences de fluage, ce qui n'est pas observé lors d'expériences à vitesse de déformation constante. (ii) Le fluage secondaire est corrélé à un taux d'EA non nul. (iii) Proche de

la rupture, le taux d'EA devient encore plus important. (iv) Certains aspect du comportement du verre (fluage primaire et secondaire, sensibilité à la température, loi de Omori) sont similaires à ce qui peut être observé dans des matériaux naturels.

Il a été expliqué par Johnson and Paris [1968] puis par Lawn and Wilshaw [1975] que les fissures peuvent se propager en mode I sous le seuil de contrainte critique correspondant à  $K_{IC}$  (la valeur critique du facteur d'intensité des contraintes décrit par Griffith [1921]). Ce phénomène est appelé la propagation “sous-critique” des fissures. Ce régime sous-critique est mis en évidence ici par les EA et explique les déformations lentes et le “brittle creep” observés. Cette interprétation sera développée dans le chapitre suivant.

## 3.2 Effet des paramètres expérimentaux (expériences C8, C17 et C20)

LES résultats expérimentaux précédents soulignent que la dilatance du verre fissuré est un processus lent qui dépend du temps. En outre, les données de taux d'EA montrent que la dilatance est le résultat de la propagation sous-critique des fissures. L'effet des principaux paramètres expérimentaux (état de contrainte et température) est discuté dans cette section en présentant les résultats des expériences C8, C17 et C20. L'effet du fluide de pore n'est pas discuté ici puisque toute une partie lui est dédiée (Partie VI de ce manuscrit).

### 3.2.1 Contrainte différentielle

LES déformations, en particulier les déformations volumiques, dépendent de la contrainte différentielle,  $Q$ . Sur la Figure 45 est représentée, la vitesse de déformation volumique mesurée à chaque palier dans la phase de fluage secondaire, et tracée en fonction de la contrainte différentielle, pour l'expérience C7. On y voit une augmentation de la vitesse de déformation avec la contrainte appliquée. Une régression exponentielle est proposée avec un coefficient  $\alpha=0,0196$ . Le coefficient de régression de cette pente est de 0,8.

On retiendra que la contrainte différentielle a pour effet d'augmenter les déformations et leur vitesse. On note une sensibilité en exponentielle de la variation de la vitesse de déformation avec la contrainte.

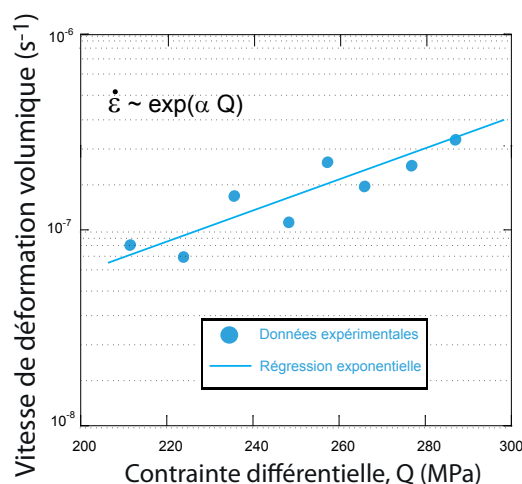


FIGURE 45 – Effet de la contrainte différentielle sur la vitesse de déformation volumique en fluage secondaire. Expérience C7.

### 3.2.2 Pression de confinement effective

Sur la Figure 46 sont représentés les résultats de déformation volumique pour l'expérience en fluage C8 réalisée à plus haute pression de confinement effective (20 MPa). Pour comparaison, nous rappelons les résultats de l'expérience C7 réalisée à 10 MPa de pression de confinement effective. Dans la première partie du chargement, la réponse est élastique (0-D'). Dans cette partie, la compression prédomine sur la dilatance. Au-delà de D' la dilatance apparaît. On note que les paliers de l'expérience C8 ont été effectués, pour certains, avant D'. En effet, ce seuil apparaît à 320 MPa de contrainte différentielle, alors que le premier palier a été réalisé dès 245 MPa. Ceci est dû à la difficulté d'identifier de façon précise le seuil D' en cours d'expérience. Les quatre premiers paliers ne sont pas à prendre en compte puisqu'aucun fluage n'est alors enregistré. Au delà du seuil D', à chaque palier, on voit que la dilatance augmente légèrement. Cette dilatance augmente, au final, beaucoup moins que dans l'expérience C7. En effet, à la fin de l'avant dernier palier, les déformations volumiques ont atteint la valeur de 0.14%. La dilatance ne prédomine pas encore sur la compression. On note en moyenne, une dilatance de 0,02% par palier.

En observant les mesures de vitesses des ondes élastiques (Figure 47a), on voit que la valeur des vitesses est moins élevée initialement que lors de l'expérience C7. Ceci n'est pas vraiment à prendre car ce qui est intéressant ce sont les variations relatives et non pas la mesure absolue qui peut varier d'une expérience à une autre en fonction de la préparation des capteurs. La diminution des vitesses avec la contrainte est moins importante que lors de l'expérience C7 à pression de confinement effective plus basse. La comparaison des densités

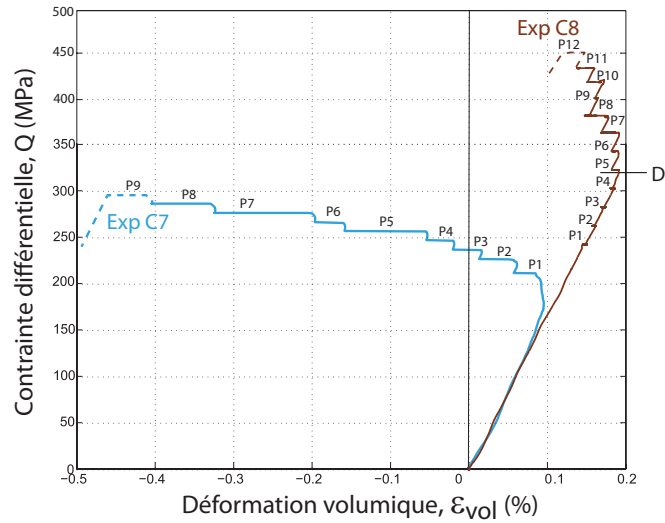


FIGURE 46 – **Effet de la pression de confinement effective sur le comportement en fluage.** Comparaison des déformations volumiques pour deux expériences réalisées à différentes pressions de confinement effective (expérience C7 à 10 MPa et expérience C8 à 20 MPa). Les derniers paliers sont indiqués en pointillés.

de fissure (Figure 47b) indique aussi que l'endommagement est moins important à pression de confinement effective plus élevée. On note une valeur finale de densité de fissure verticale de 0,15 et une anisotropie plus faible.

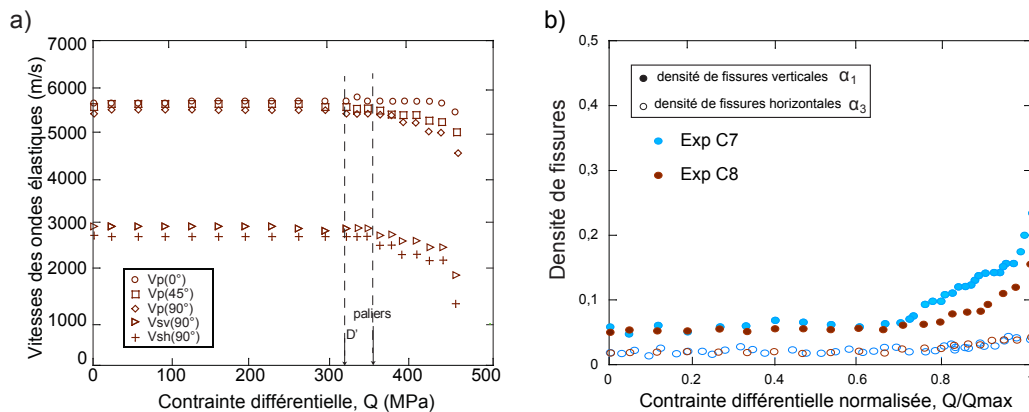


FIGURE 47 – **Effet de la pression de confinement effective sur le comportement des vitesses et de l'endommagement en fluage.** a) Variation des vitesses élastiques pour l'expérience C8. b) Interprétation des vitesses en terme de densité de fissure et comparaison aux résultats de l'expérience C7.

### 3.2.3 Température

DANS la littérature, il est montré que l'effet de la température accélère la propagation des fissures [Waza et al., 1980; Michalske and Freiman, 1982; Meredith and Atkinson, 1985; Michalske and Bunker, 1987]. Dans notre étude, l'influence de la température a été observée expérimentalement en comparant trois expériences réalisées à trois températures différentes : l'expérience C7 est réalisée à température ambiante (à 20 °C), l'expérience C17 à 50 °C et l'expérience C20 à 70 °C.

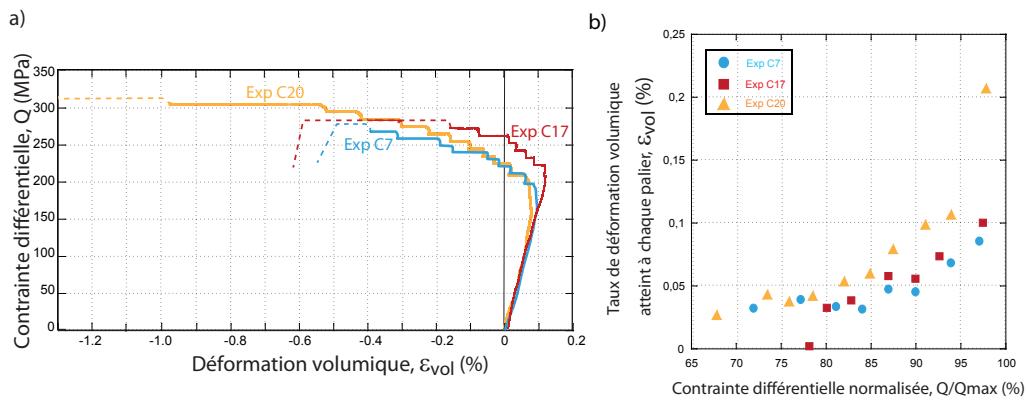


FIGURE 48 – **Effet de la température sur les déformations volumiques en fluage.** a) Comparaison des déformations volumiques pour trois expériences réalisées à différentes températures (expérience C7 à 20 °C, expérience C17 à 50 °C et expérience C20 à 70 °C). Les derniers paliers sont indiqués en pointillés. b) Taux de déformations volumiques en fonction de la contrainte différentielle pour ces trois expériences.

On voit sur les Figure 48 l'augmentation des déformations volumiques avec la température. En effet, que l'on observe la déformation volumique en fonction de la contrainte différentielle (Figure 48a) ou le taux de déformation atteint à la fin de chaque palier (Figure 48b), l'expérience C20 montre des déformations plus importantes que l'expérience C17, et encore plus que l'expérience C7. On note cependant que le seuil  $D'$  est apparu à une contrainte différentielle plus élevée pour l'expérience C17 ( $Q_{D'}=180$  MPa pour l'expérience C7 et C20 et  $Q_{D'}=205$  MPa pour C17).

L'effet de la température est classiquement interprétée par une loi de type Arrhenius. La vitesse de déformation est décrite comme étant proportionnelle, en échelle logarithmique, à l'inverse de la température. Le coefficient de proportionnalité est l'énergie d'activation. Ce paramètre représente l'énergie qui doit être apportée à un système pour qu'un saut supplémentaire de déformations ait lieu. Dans notre cas il s'agit de la rupture des liaisons inter-atomique qui permet une propagation d'un segment de fissure [Lawn and Wilshaw, 1975; Darot and Gueguen, 1986]. Selon les conditions expérimentales de contraintes appli-



quées, la fissure peut avancer (propagation) ou reculer (cicatrisation).

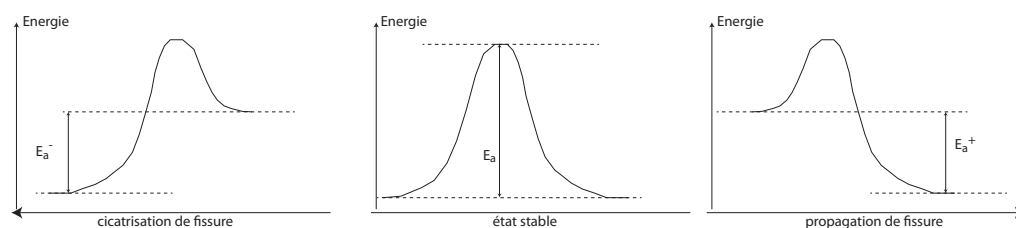


FIGURE 49 – Principe d'un mécanisme thermiquement activé.

Pour un palier, l'évolution de la vitesse de déformation en fonction de la température est donnée sur la Figure 50. La Figure 50a, représente la vitesse de déformation volumique en fonction du temps pour les trois températures différentes, chacune au palier  $Q=255$  MPa. Sur la Figure b) est reportée la valeur de la vitesse pendant la phase de fluage secondaire (segment AB) en fonction de l'inverse de la température en échelle logarithmique. On en déduit la valeur du paramètre d'énergie d'activation avec la pente de ce graphique :  $E_a=33,6$  KJ.mol<sup>-1</sup>. Si on mesure ce paramètre pour chaque palier, on obtient les barres d'erreurs indiquées en Figure 50b et on en déduit une valeur moyenne :  $E_a=32$  KJ.mol<sup>-1</sup>±10%. Cette méthode de détermination de l'énergie d'activation a déjà été utilisée dans d'autres matériaux, notamment dans le grès, par Dewers and Hajash [1995].

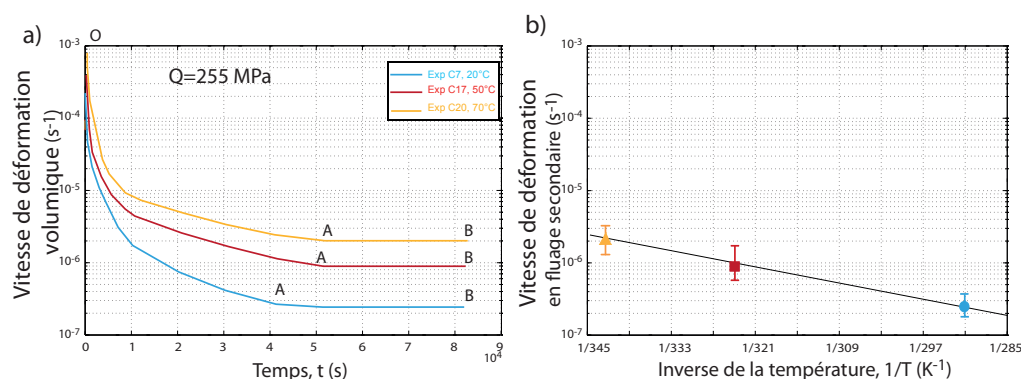


FIGURE 50 – Vitesse de déformation volumique pour un palier pour les trois températures considérées. a) Vitesse de déformation en fonction du temps à  $Q=255$  MPa. b) Vitesse de déformation en phase de fluage secondaire reportée en échelle logarithmique en fonction de l'inverse de la température.

L'effet de la température peut être également observé par le suivi de l'endommagement (Figure 51). On observe, comme à température ambiante, une diminution des vitesses radiale et oblique au-delà du seuil D'. L'interprétation en terme de densité de fissure indique une plus forte densité de fissure atteinte à température plus élevée. On note une densité maximale de fissures verticales de  $\alpha_1=0,27$  (à 50°C) et 0,29 (à 70°C), contre 0,23 à tempé-

rature ambiante. La densité de fissure horizontale ne varie pas beaucoup ( $\alpha_{3_{max}}=0,06$ ). Ces résultats nous indiquent que l'augmentation de température augmente l'endommagement comme nous avons pu le constater avec les déformations, mais également que cet endommagement supplémentaire est principalement dû à la propagation de fissures verticales.

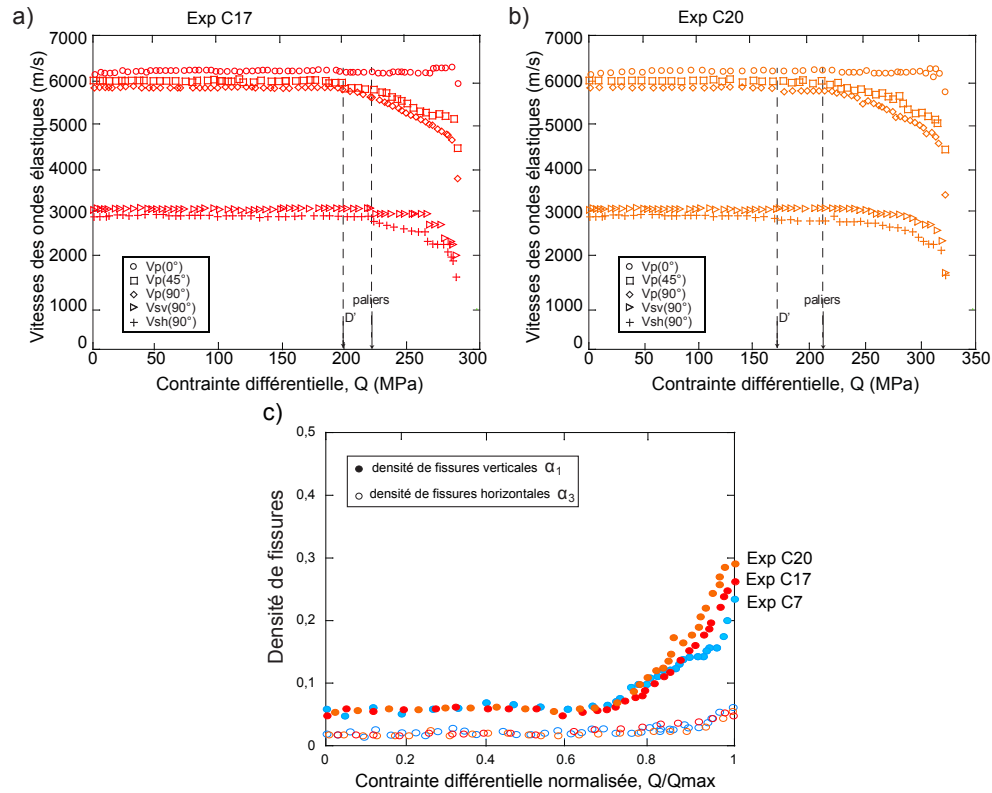


FIGURE 51 – **Effet de la température sur le comportement des vitesses et de l'endommagement en fluage.** a) et b) Variation des vitesses élastiques pour les expériences C17 et C20. c) Interprétation des vitesses en terme de densité de fissure et comparaison aux résultats de l'expérience C7 à température ambiante.

### 3.3 Interprétation en terme de longueur moyenne de fissures

LES résultats expérimentaux présentés dans la section 3.1 mettent en évidence les phénomènes lents dépendant du temps dans le verre. Grâce aux résultats d'émission acoustique, ces déformations lentes sont comprises comme étant dues à la propagation sous-critique des fissures. Dans cette section nous allons voir comment les données expérimentales de déformations volumiques peuvent nous donner une indication de la longueur des fissures ainsi que de leur propagation au cours du temps.

### 3.3.1 Lien entre déformation volumique et géométrie des fissures

UNE expérience permet de mesurer la déformation volumique,  $\varepsilon_v(t)$ . On en déduit sa dérivée par rapport au temps,  $\dot{\varepsilon}_v(t)$ . Il existe ensuite un lien entre cette valeur et la taille moyenne des fissures via la variation de volume. Si on suppose que ce qui fait varier la déformation volumique est essentiellement la variation de porosité de fissures,  $\phi$ , et si on néglige les variations de volume de la matrice solide, on peut alors écrire :

$$\dot{\varepsilon}_v(t) = \frac{1}{V_T} \frac{dV_T}{dt} = \frac{d\phi}{dt} . \quad (47)$$

La porosité de fissures représente le volume de toutes les fissures sur le volume total :

$$\phi = \frac{NV_{spheroïde}}{V_T} , \quad (48)$$

où  $N$  représente le nombre total de fissures,  $V_T$  le volume de l'échantillon (que l'on supposera constant par rapport à la variation du volume des pores), et  $V_{spheroïde}$ , le volume d'une fissure de forme sphéroïdale. Ce volume s'écrit :  $V_{spheroïde} = 4/3 \pi a^2 w$ , où  $a$  est le rayon de la fissure et  $w$  l'ouverture (Figure 52). En première approximation on fait l'hypothèse que le facteur de forme ( $\xi = w/a$ ) reste constant ainsi que le nombre de fissures. On obtient alors :

$$\frac{d\phi}{dt} = \frac{4}{3} \frac{N\pi\xi}{V_T} \frac{da^3}{dt} . \quad (49)$$

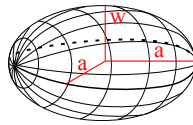


FIGURE 52 – Géométrie d'une fissure sphéroïdale.

Ainsi le lien entre déformation volumique et longueur de fissure est décrit par l'équation différentielle suivante :

$$\dot{\varepsilon}_v(t) = \frac{4}{3} \frac{N\pi\xi}{V_T} \frac{d(a^3)}{dt} \quad (50)$$

La résolution de cette équation différentielle qui nous permettra d'obtenir la propagation des fissures peut être faite suivant deux méthodes. La première, est une résolution par approximation des données expérimentales : on paramétrise les données expérimentales de déformation volumique, ce qui nous permet d'obtenir une idée globale du résultat. La seconde méthode est une résolution numérique qui part des résultats expérimentaux bruts

et qui nous donne par itération, la longueur de fissures au cours du temps.

### 3.3.2 1ère approche par paramétrisation des données

**V**OICI les étapes de cette première méthode de résolution :

- On modélise les déformations par une fonction mathématique simple.
- On résout l'équation (50) et on trouve la solution mathématique exacte pour  $a(t)$ .

La vitesse de déformation volumique est une fonction du temps. On a pu voir expérimentalement qu'elle avait l'aspect d'une fonction exponentielle décroissante. Ainsi on peut décrire la vitesse de déformation volumique par la loi empirique suivante :

$$\dot{\varepsilon}_v(t) = V_\varepsilon e^{-t/\tau_I} \quad (51)$$

Deux paramètres définissent alors notre phénomène :

- $V_\varepsilon$  qui correspond à la vitesse initiale des déformations,
- $\tau_I$  qui représente le temps caractéristique du phénomène de fluage primaire.

Ces paramètres peuvent être déterminés pour chaque palier de façon à prendre en compte toutes les données, par la méthode d'inversion des moindres carrés.

#### **En aparté : détail de la méthode d'inversion.**

Pour un temps  $t$ , on fixe

$V_\varepsilon$ , puis

$\tau_I$  :

on calcule la vitesse des déformations selon l'équation (51),

on compare à la valeur expérimentale à travers la méthode

des moindres carrés :  $e = (a_{th} - a_{exp})^2$ . Si  $e < e_{min}$ ,

on conserve dans une matrice à part,  $V_\varepsilon$  et  $\tau$ .

sinon on passe au  $\tau$  suivant,

puis au  $V_\varepsilon$  suivant, etc...

jusqu'à obtenir pour le temps  $t$ , le couple  $(\tau, V_\varepsilon)$  qui décrit le mieux les données en

ce point. On itère cette boucle pour chaque pas de temps et on garde les valeurs de  $V_\varepsilon$  et

$\tau$  qui décrivent le mieux les données du palier complet.

Pour l'expérience C7 réalisée à température ambiante, le tableau suivant résume les paramètres décrivant les déformations de chaque palier.

(1). Cette valeur n'est pas à prendre en compte car le début du palier est corrélé avec un saut de déformation qui fausse la valeur initiale de la vitesse de déformation.

Tableau 12 – Valeurs des paramètres de la modélisation de la déformation.

n° de palier	$\sigma_I (MPa)$	$V_\varepsilon (s^{-1})$	$\tau (s)$
1	225	0,012	70
2	240	0,012	55
3	250	0,014	50
4	260	0,005	50
5	270	0,006	40
6	280	0,011	35
7	290	0,11 <sup>(1)</sup>	30
8	300	0,011	30

La résolution de l'équation différentielle (50) avec  $\varepsilon_v(t)$  donné par l'équation (51) est assez simple. La solution peut s'écrire :

$$a^3(t) = a_f^3 + (a_0^3 - a_f^3) e^{-t/\alpha} \quad (52)$$

En associant les équations (50) et (52) on peut trouver  $\alpha$  et  $a_f$  en fonction des paramètres décrivant les déformations :

$$\left\{ \begin{array}{l} \alpha = \tau_I \\ a_f^3 = a_0^3 + \frac{V_\varepsilon \tau_I}{\frac{4}{3} \frac{N\pi\xi}{V_T}} \end{array} \right. \quad (53)$$

Finalement, avec  $a_0$  qui est la taille initiale des fissures :

$$[a(t)]^3 = a_0^3 + \frac{V_\varepsilon \tau_I}{\frac{4}{3} \frac{N\pi\xi}{V_T}} \left( 1 - e^{-t/\tau_I} \right) \quad (54)$$

Le terme  $N\pi\xi/V_T$  est interprété à partir de la densité de fissure, sachant que  $\rho_c = Na^3/V_T$ . Il est supposé constant en considérant le rayon initial des fissures,  $a_0$ . Ainsi, les paramètres décrivant  $a(t)$  sont tous identifiables. On peut alors obtenir, palier par palier, l'évolution de la longueur des fissures à partir de la description des déformations volumiques.

### 3.3.3 2ème approche par résolution numérique

LA méthode précédente ne décrit la propagation des fissures que de façon moyennée sans prendre en compte les éventuelles variations locales dans le temps. La seconde approche proposée ici est plus directe puisque l'on propose de partir de l'équation (50) et de la résoudre numériquement en calculant point par point la propagation des fissures à partir des données brutes expérimentales. Pour cela, l'équation (50) est inversée puis décomposée

par pas de temps :

$$\frac{a_i^3 - a_{i-1}^3}{dt} = \frac{\dot{\varepsilon}_{v_{i-1}}}{\frac{4}{3} \frac{N\pi\xi}{V_T}}. \quad (55)$$

Avec cette méthode on garde les valeurs expérimentales de déformation volumique, on calcule pour chaque temps, la vitesse de déformation que l'on reporte dans cette équation. On fixe, un pas de temps et un rayon initial et on la résout numériquement pour obtenir  $a(t)$  à chaque pas de temps.

### 3.3.4 Comparaison des deux approches

DANS la seconde méthode (Figure 53b) on remarque qu'il y a de nombreux artefacts expérimentaux inutiles que l'on conserve (comme les oscillations dues à la température, ou certains sauts de déformations qui ne sont pas vraiment dus à la propagation des fissures). De ce fait, l'estimation de la propagation des fissures moyenne peut être sur-estimée.

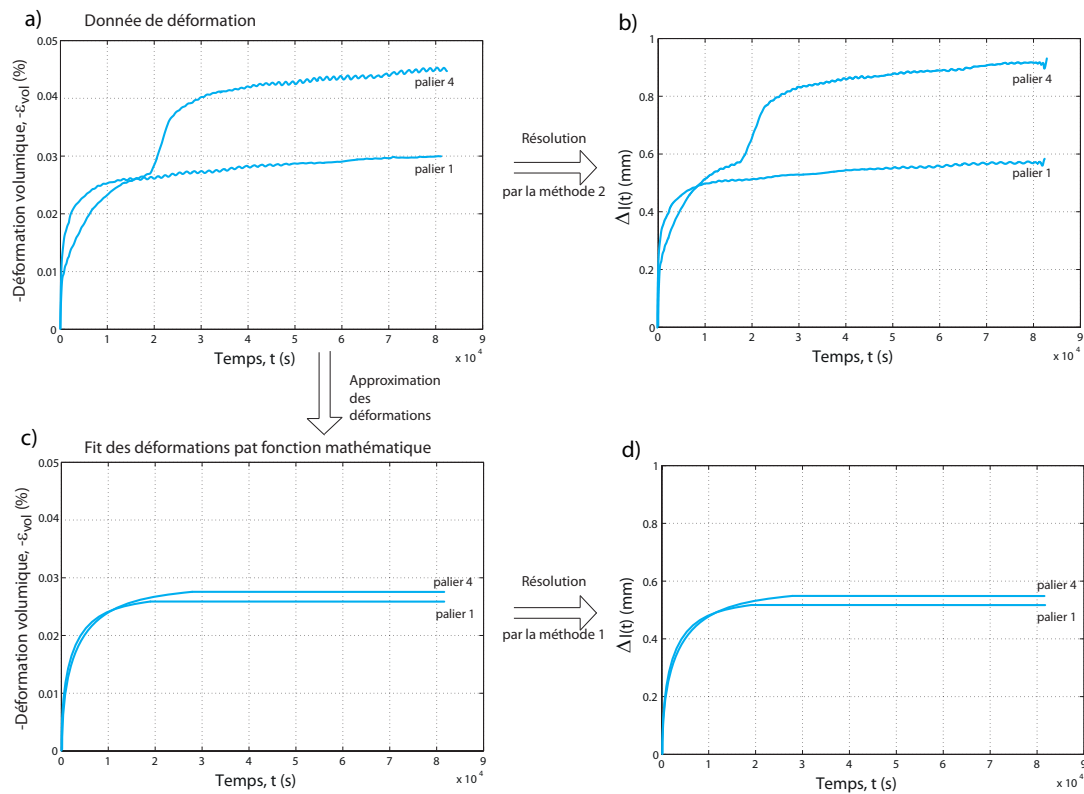


FIGURE 53 – **Comparaison des méthodes de calcul de la solution  $l(t)$ .** a) Données en déformation volumiques initiales pour deux paliers différents (palier 1,  $Q=210$  MPa et palier 4,  $Q=245$  MPa). b)  $l(t)$  obtenue par la résolution numérique à partir des données exactes (méthode directe, 2). c) Déformation volumique approchées selon la première méthode. d)  $l(t)$  obtenue par la résolution exacte des données approchées (méthode 1).

Malgré cela, l'intérêt de cette méthode est de conserver toutes les informations des données, notamment celles en fin de palier. En effet, la première méthode (Figure 53c, d), conduit à conclure que la propagation des fissures se stabilise au point de s'arrêter. Il est vrai que les déformations (Figure 53a) sont ralenties, mais elles ont tout de même une vitesse non nulle. Cette précision est conservée dans la seconde méthode.

Il en résulte que la première méthode donne une bonne approximation qui peut être intéressante quand les données expérimentales montrent des sauts de déformations trop nombreux ou en cas de pertes d'informations par exemple, mais la seconde méthode permet d'obtenir plus de précision sur le comportement lent des fissures en fluage secondaire.

Pour améliorer la seconde méthode, il faut, une fois les résultats bruts obtenus, les moyenner pour supprimer l'effet de la température. Certains sauts de déformations qui ne semblent pas correspondre au comportement normal de la propagation sous-critique des fissures peuvent ainsi ne pas être pris en compte. On obtient alors une méthode optimisée pour analyser nos données expérimentales. C'est cette méthode qui est utilisée dans la suite de notre étude et qui permet d'obtenir la propagation de la longueur des fissures à partir des données expérimentales des déformations volumiques.

## Interprétation théorique du fluage secondaire

### 4.1 Propagation sous-critique des fissures

ON trouve dans la littérature, deux lois différentes décrivant la vitesse de propagation sous-critique des fissures,  $dl/dt$  <sup>(1)</sup>. La première est une loi empirique décrivant par une loi puissance la sensibilité des fissures à la contrainte [Charles, 1958]. Cette loi n'étant pas justifiable d'un point de vue théorique, nous considérerons la seconde qui décrit par une loi exponentielle la propagation des fissures [Lawn, 1975; Lawn and Wilshaw, 1975; Darot and Gueguen, 1986; Ciliberto et al., 2001; Vanel et al., 2009]. Dans ces études, on suppose qu'il existe une barrière d'énergie (l'énergie d'activation) entre deux positions,  $x$  et  $\delta x$  (pour une propagation élémentaire de fissure). On écrit alors une loi exponentielle qui décrit la vitesse de propagation des fissures :

$$\frac{dl}{dt} = \dot{l}_0 e^{\frac{-E^*}{kT}}, \quad (56)$$

où  $\dot{l}_0$  est une valeur de vitesse de propagation caractéristique dans le verre. On suppose, que cette vitesse est définie par le produit de la distance inter-atomique,  $b$ , et de la fréquence de vibration atomique,  $\nu$  :  $\dot{l}_0 \simeq b\nu \simeq 10^4 \text{ m.s}^{-1}$  ( $b \simeq 10^{-9} \text{ m}$ ;  $\nu \simeq 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ) [Lawn, 1975; Lawn and Wilshaw, 1975].  $k$  est la constante de Boltzmann et  $T$  est la température (en K). Le terme  $E^*$  représente l'énergie d'activation globale du système. Comme nous l'avons décrit avec la Figure 49, une fissure peut avancer (se propager) ou reculer (se cicatriser). On décompose alors la vitesse de propagation des fissures en deux cas possible :

$$\frac{dl^+}{dt} = \dot{l}_0 e^{\frac{-(E_a - \delta E_a)}{kT}} \quad \frac{dl^-}{dt} = \dot{l}_0 e^{\frac{-(E_a + \delta E_a)}{kT}} \quad (57)$$

---

(1). à partir de maintenant, nous noterons de façon plus générale,  $l(t)$  la propagation des fissures, l'écriture en  $a(t)$  faisant référence à une géométrie particulière de fissure.



où  $E_a$  est l'énergie d'activation initiale liée à la définition de l'équilibre de Griffith, et  $\delta E_a$  est une énergie supplémentaire apportée par le saut de déplacement de la fissure. Dans notre cas de contrainte, les sauts en arrière sont négligeable face à la propagation des fissures. On obtient alors :

$$\frac{dl}{dt} = l_0 e^{\frac{-E_a + \delta E_a}{kT}} \quad (58)$$

Le terme  $\delta E_a$  représente l'énergie apportée par les contraintes mises en jeux et s'écrit :  $\delta E_a = s (G - 2\gamma)$ , où  $s$  représente l'extension surfacique élémentaire de la fissure,  $G$  représente la force d'extension des fissures et peut s'assimiler à  $K_I^2/E$  dans l'hypothèse de contraintes planes.  $K_I$  est le facteur d'intensité des contraintes en tête de fissure et  $E$  est le module de Young. Enfin,  $\gamma$  représente l'énergie de surface entre la fissure et l'environnement. Ce dernier paramètre est une quantité thermodynamique qui dépend du fluide de pore contenu dans les fissures<sup>(2)</sup>.

On notera que cette formulation met en jeu une loi exponentielle qui correspond bien à nos résultats expérimentaux. D'autre part, elle à l'avantage de prendre en compte des paramètres environnementaux tels que la température ou encore le fluide de pore utilisé.

On obtient au final l'expression de la vitesse de propagation des fissures :

$$\frac{dl}{dt} = l_0 e^{\frac{-E_a}{kT}} e^{\frac{s}{kT} \left( \frac{K_I^2}{E} - 2\gamma \right)} \quad (59)$$

Il est à noter que le membre de droite de cette équation n'est pas une constante car  $K_I = K_I(l(t))$ .

## 4.2 Géométrie des fissures et calcul de $K_I$

**A**FIN de relier le facteur d'intensité des contraintes,  $K_I$  à la longueur des fissures,  $l(t)$  nous utilisons ici le modèle de Ashby and Sammis [1990] repris par Bhat et al. [2011]. Le comportement des déformations en fluage, dépend de la valeur du facteur d'intensité des contraintes en pointe de fissure. Trois régimes peuvent être identifiés :

- Le premier correspond aux valeurs de contraintes très basses. À ce niveau, les fissures ne peuvent pas se propager car la force d'ouverture des fissures n'est pas assez importante pour contrer la compression due au confinement.

---

(2). l'influence théorique de ce paramètre sera décrit dans la dernière partie quand nous nous intéresserons aux interactions fluide/fissure.

- Le second régime est atteint à un chargement axial plus élevé -mais toujours en dessous du seuil de rupture macroscopique-. Dans ce régime la propagation sous-critique des fissures se met en place. Les fissures se propagent de façon stable.
- Finalement, le troisième et dernier régime est observé quand les interactions entre fissures ne sont plus négligeables. De telles interactions entraînent une rupture en fluage tertiaire.

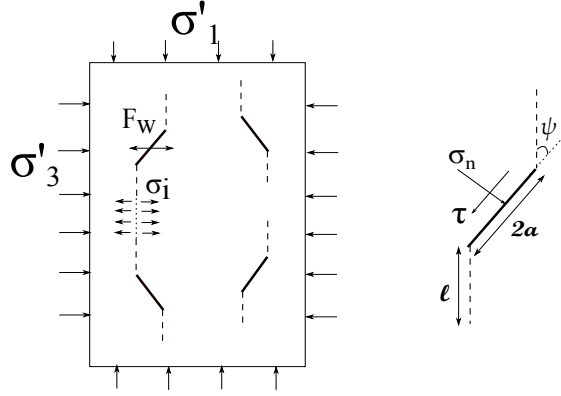


FIGURE 54 – **Géométrie du modèle micro-mécanique.** Le glissement d’une fissure circulaire de rayon  $a$  produit une force d’ouverture  $F_w$ . Cette force entraîne l’ouverture des fissures dans la direction de  $\sigma'_3$  et leur propagation, avec une longueur  $l(t)$ , dans la direction de  $\sigma'_1$ .

Le choix d’une description appropriée de la microstructure des fissures est une hypothèse clé. Suivant Ashby and Sammis [1990], Deshpande and Evans [2008] et Bhat et al. [2011, 2012] nous supposons une géométrie de type “wing-crack” (Figure 54) : les fissures initiales sont obliques et ont une forme de disque de rayon  $a$ . L’application des contraintes  $\sigma'_1$  et  $\sigma'_3$  créent une “wing-crack” qui va se propager. Ainsi, d’après ces auteurs le facteur d’intensité des contraintes,  $K_I$ , en tête de fissures est issu de trois forces :

- (i) Une force d’ouverture,  $F_w$ , due à la contrainte différentielle appliquée :

$$F_w = (A_1 \sigma'_1 - A_3 \sigma'_3) a^2, \quad (60)$$

où les constantes  $A_1$  et  $A_3$ , dépendent du coefficient de friction, et sont connues grâce à l’étude de Ashby and Sammis [1990] :

$$\begin{cases} A_1 = \pi \sqrt{\frac{\beta}{3}} \left[ \sqrt{1 + \mu^2} + \mu \right], \\ A_3 = A_1 \frac{\sqrt{1 + \mu^2} + \mu}{\sqrt{1 + \mu^2} - \mu}. \end{cases} \quad (61)$$

où le paramètre  $\beta$  fut introduit à l’origine pour éviter à  $K_I$  de diverger pour les faibles valeurs de  $l(t)$  [Ashby and Sammis, 1990]. Ces auteurs proposaient  $\beta=0,1$ . Ce paramètre a

été précisé dans l'étude de Brantut et al. [2012] et est relié au coefficient de friction,  $\mu$  :

$$\beta = \frac{1}{\pi} \frac{\sqrt{1 + \mu^2} + \mu}{\sqrt{1 + \mu^2} - \mu}. \quad (62)$$

Connaissant le coefficient de friction du verre ( $\mu = 0.54$ ) on obtient  $\beta=0.9$ . La force  $F_w$  représente la première contribution à  $K_I$  :

$$K_I^a = \frac{F_w}{[\pi(l(t) + \beta a)]^{3/2}}. \quad (63)$$

(ii) La seconde contribution provient de la contrainte de confinement,  $\sigma'_3$  :

$$K_I^b = -\frac{2}{\pi} \sigma'_3 \sqrt{\pi l(t)}. \quad (64)$$

(iii) Enfin, la dernière contribution est due aux contraintes d'interaction entre fissures,  $\sigma'_i$ , qui est issue de la force d'attraction entre deux fissures :

$$K_I^c = \frac{2}{\pi} \sigma'_i \sqrt{\pi l(t)}, \quad (65)$$

où la contrainte d'interaction est décrite par :

$$\sigma'_i = \frac{F_w}{d^2}, \quad (66)$$

où  $d$  représente la distance moyenne entre deux fissures. Elle varie avec  $l(t)$  en diminuant quand  $l(t)$  augmente. Ce paramètre  $d$ , sera détaillé dans la partie suivante de ce manuscrit quand nous nous intéresserons aux interactions entre fissures et au troisième régime de propagation des fissures (fluage tertiaire).

Le modèle d'Ashby-Samms décrit le facteur d'intensité des contraintes ainsi :

$$K_I = \frac{F_w}{[\pi(l(t) + \beta a)]^{3/2}} - \frac{2}{\pi} (\sigma'_3 - \sigma'_i) \sqrt{\pi l(t)}. \quad (67)$$

Dans des conditions de fluage secondaire où les interactions entre fissures ne sont pas encore présentes, l'expression de  $K_I$  peut être simplifiée :

$$K_I = \frac{F_w}{[\pi(l(t) + \beta a)]^{3/2}} - \frac{2}{\pi} \sigma'_3 \sqrt{\pi l(t)}. \quad (68)$$

### 4.3 Prédiction théorique de la longueur des fissures

La combinaison de la loi (59) et de l'équation (68) conduit à une équation différentielle en  $l(t)$  qui nous permet de déterminer l'évolution de la propagation des fissures mais dont la résolution analytique n'est pas possible. Il faut donc utiliser une résolution numérique. Un schéma de type Runge et Kutta à l'ordre 4 est utilisé car cette méthode est stable et le temps de calcul est réduit en comparaison d'une méthode moins complexe mais plus lente de type Euler. Une comparaison de ces deux méthodes numériques est proposée en Annexe B de ce manuscrit.

Nous allons appliquer ce modèle aux données de l'expérience C7 que nous avons interprétées en terme de longueurs de fissures avec l'hypothèse d'un facteur de forme constant. La pression effective de confinement est alors de  $\sigma'_3=10$  MPa, la température,  $T=20^\circ\text{C}=293,15$  K, et la contrainte axiale effective,  $\sigma'_1$ , augmente du palier 1 à 8 de 220 MPa à 295 MPa. Les paramètres du modèle sont récapitulés dans le Tableau 13.

Tableau 13 – Coefficients et paramètres intervenant dans les équations (59) et (68).

Paramètre	Symbol	Valeur
Coefficient de friction	$\mu$	0,54 <sup>(1)</sup>
Module de Young	$E_0$	41,9 GPa <sup>(2)</sup>
Coefficient de Poisson	$\nu_0$	0,30 <sup>(1)</sup>
Énergie d'activation	$E_a$	32 kJ.mol <sup>-1</sup> (1)
Rayon initial des fissures	$a$	1,5 mm <sup>(1)</sup>
Surface élémentaire d'un saut de fissure	$s$	3,2.10 <sup>-20</sup> m <sup>2</sup> (3)
Énergie de surface (dans le cas de l'eau)	$\gamma$	1,0 J.m <sup>-2</sup> (4)

On note que pour des raisons d'homogénéité d'unités, l'énergie d'activation exprimée en kJ.mol<sup>-1</sup>, doit être divisée par le nombre d'Avogadro afin d'être exprimée en kJ.

La prédiction de l'évolution de  $l(t)$  (notée  $\Delta l(t)$ ), en fonction du temps est indiquée sur la Figure 55a. L'évolution de la longueur des fissures est donnée pour quatre valeurs différentes de contrainte. La Figure 55b montre la prédiction théorique de la propagation des fissures pour les 8 paliers successifs (de  $\sigma'_1=220$  à 295 MPa). On trouve une propagation totale de 3,2 mm. Les prédictions du modèle reflètent bien le comportement de la propagation des

(1). Résultat de cette thèse.

(2). Dans cette étude, afin de conserver une cohérence avec les précédentes publications, nous considérons ce module, qui est un peu plus faible que nos propres mesures, et qui provient de l'étude publiée de Ougier-Simonin et al. [2010].

(3). [Darot and Gueguen, 1986].

(4). [Reuschlé, 1989; Meredith, 1990].

fissures pendant le fluage primaire et secondaire.

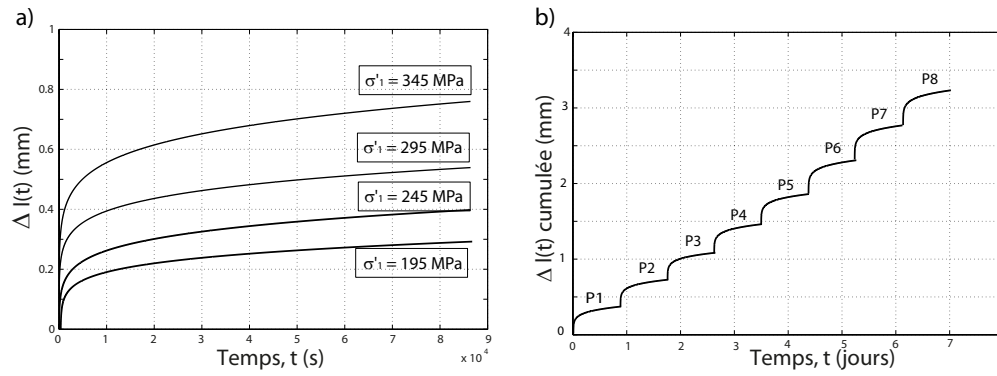


FIGURE 55 – **Prédiction des longueurs de fissures.** a) Résultat du modèle micro-mécanique pour 4 valeurs de contraintes axiales effectives ( $\sigma'_1=345, 295, 245$  et  $195$  MPa). b) Propagation des fissures cumulées selon les 8 paliers de l'expérience C7.

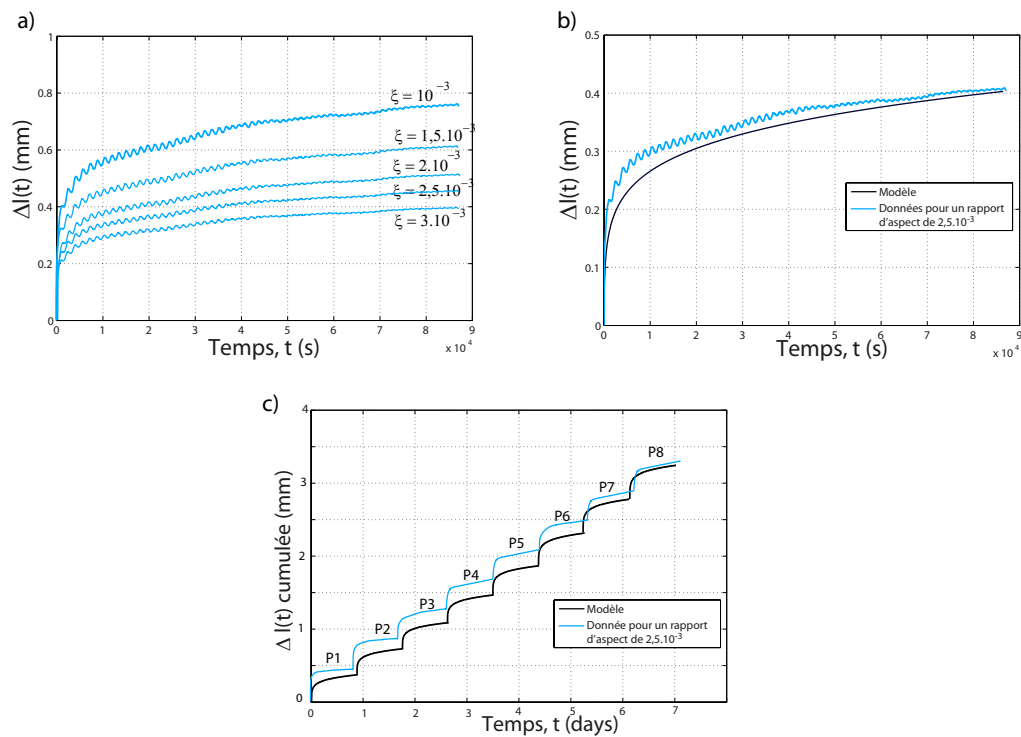


FIGURE 56 – **Comparaison des résultats du modèle et des données en termes de longueurs de fissures.** a) Pour un palier à  $\sigma'_1=245$  MPa, données en déformations volumiques décrites en longueur de fissures pour différentes valeurs de facteur de forme. Prédiction de la propagation des fissures pour ce même palier, comparée au résultat déduit avec  $\xi=2.5 \cdot 10^{-3}$ . c) Même comparaison pour la succession des 8 paliers.

Les courbes de la Figure 56a montrent les résultats expérimentaux de l'expérience C7 pour le palier  $\sigma'_1=245$  MPa interprété avec des valeurs de facteur de forme des fissures,  $\xi$ , allant de  $3 \cdot 10^{-3}$  à  $10^{-3}$ . Pour  $\xi=10^{-3}$ , la propagation des fissures est de 0,8 mm après 24 h. La valeur prédite est de 0,4 mm (Figure 55a). La différence entre la prédiction du modèle et les données provient certainement de l'approximation faite sur la forme des fissures (i.e. le facteur de forme des fissures). La valeur de  $\xi$  doit être reconsidérée. Les Figures 56a & b montrent que la meilleur correspondance est trouvée pour un facteur de forme de  $\xi=2,5 \cdot 10^{-3}$ . Sur la Figure 56c est alors représentée la comparaison du modèle et des données interprétées avec ce nouveau facteur de forme pour la succession des 8 paliers.

## 4.4 Prédiction théorique des déformations

NOUS avons montré, que par le biais d'une hypothèse forte de facteur de forme constant, il était possible d'interpréter les données de déformations volumiques en termes de propagation de fissure. Ainsi transformées, ces données sont comparées au modèle micro-mécanique présenté plus haut. Il en résulte une bonne prédiction de la propagation des fissures par le modèle. Cependant, et afin de s'affranchir de cette hypothèse forte, il est possible d'obtenir du modèle de "wing-crack" la prédiction des déformations.

### 4.4.1 Considérations énergétiques

DESHPANDE and Evans [2008] ont montré comment il est possible d'obtenir les déformations grâce à des considérations énergétiques. À mesure que les fissures se propagent, les modules élastiques varient. La densité totale d'énergie du système,  $W$ , est égale à la somme de deux contributions : l'énergie propre du solide non fissuré,  $W_0$  et la contribution des fissures,  $N_v \Delta W$  (où  $N_v$  représente le nombre de fissures par unité de volume définie par la densité de fissure comme étant  $\rho_c = N_v a^3$ ). La partie élastique,  $W_0$  est décrite à partir du coefficient de Poisson et du module de Young du verre intact,  $\nu_0$  et  $E_0$  :

$$W_0 = \left( \frac{1 + \nu_0}{E_0} \right) Q^2 + \frac{3(1 - 2\nu_0)}{E_0} \frac{P^2}{2}, \quad (69)$$

Les contraintes  $Q$  et  $P$  sont les contraintes différentielle et moyenne. La contribution des fissures est donnée par la relation suivante :

$$\Delta W = \int_{\Gamma} \left[ \frac{1 - \nu_0^2}{E_0} K_I^2 - 2\gamma \right] dx d\Gamma, \quad (70)$$

où  $\Gamma$  est le front de fissure et  $dx$  est la propagation des fissures (la contribution des contraintes est intégrée sur l'incrément de surface de toutes les fissures). Le facteur d'intensité des contraintes étant connu par itération des équations (59) et (68), on peut atteindre les déformations en dérivant l'énergie par rapport à la contrainte :

$$\Delta\varepsilon_{ij} = \frac{\delta W}{\delta\sigma_{ij}}. \quad (71)$$

La déformation volumique,  $\Delta\varepsilon_{kk}$ , est la somme des dérivées  $\Delta(\varepsilon_{11} + \varepsilon_{22} + \varepsilon_{33})$ . Les étapes de calcul des déformations, à partir du facteur d'intensité des contraintes, sont précisées en Annexe C de ce manuscrit.

#### 4.4.2 Prédiction des déformations

LA Figure 57 est le rappel des résultats de vitesse de déformation volumique en fluage secondaire (Figure 45) pour l'expérience C7. La prédiction théorique est ajoutée. La comparaison entre les données (avec un coefficient d'exponentielle de 0,0196) et les prédictions théoriques (avec un coefficient d'exponentielle de 0,0244) indique une bonne corrélation (20% d'erreur).

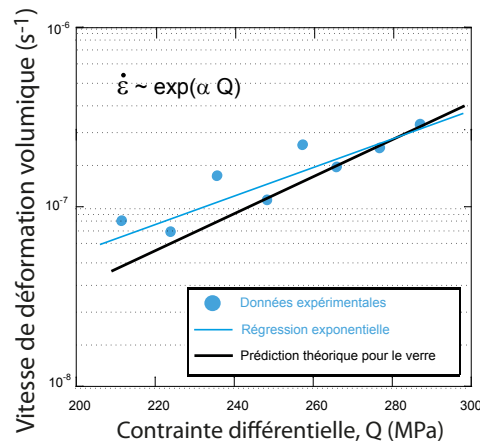


FIGURE 57 – **Vitesse de déformation volumique en fluage secondaire en fonction de la contrainte différentielle.** Les données expérimentales sont reportées par les points bleus. Une régression exponentielle de coefficient,  $\alpha$ , 0,0196 est mesurée. La prédiction théorique de la vitesse de déformation est comparée et est représentée par le trait épais noir. Le coefficient  $\alpha$ , ici est de 0,0244.

58 présente selon les paramètres de l'expérience C7, la prédiction (en noir) des déformations volumiques pour chaque palier (les données brutes de déformations sont également représentées en bleu). La prédiction des déformations pour le premier palier ( $\sigma'_1=220$  MPa) sous-estime la valeur initiale de vitesse de déformation ainsi que la valeur de déformation

atteinte à la fin du palier (0.018% contre 0.025%). C'est également le cas pour les trois paliers suivants. Cependant cette sous-estimation est plus faible pour les paliers suivants. Pour le cinquième palier, si on ne tient pas compte du saut de déformation (mis en évidence par une étoile) qui n'est pas significatif du comportement de propagation sous-critique du réseau globale des fissures, la prédiction du modèle correspond bien aux les données. C'est aussi le cas pour les paliers suivants.

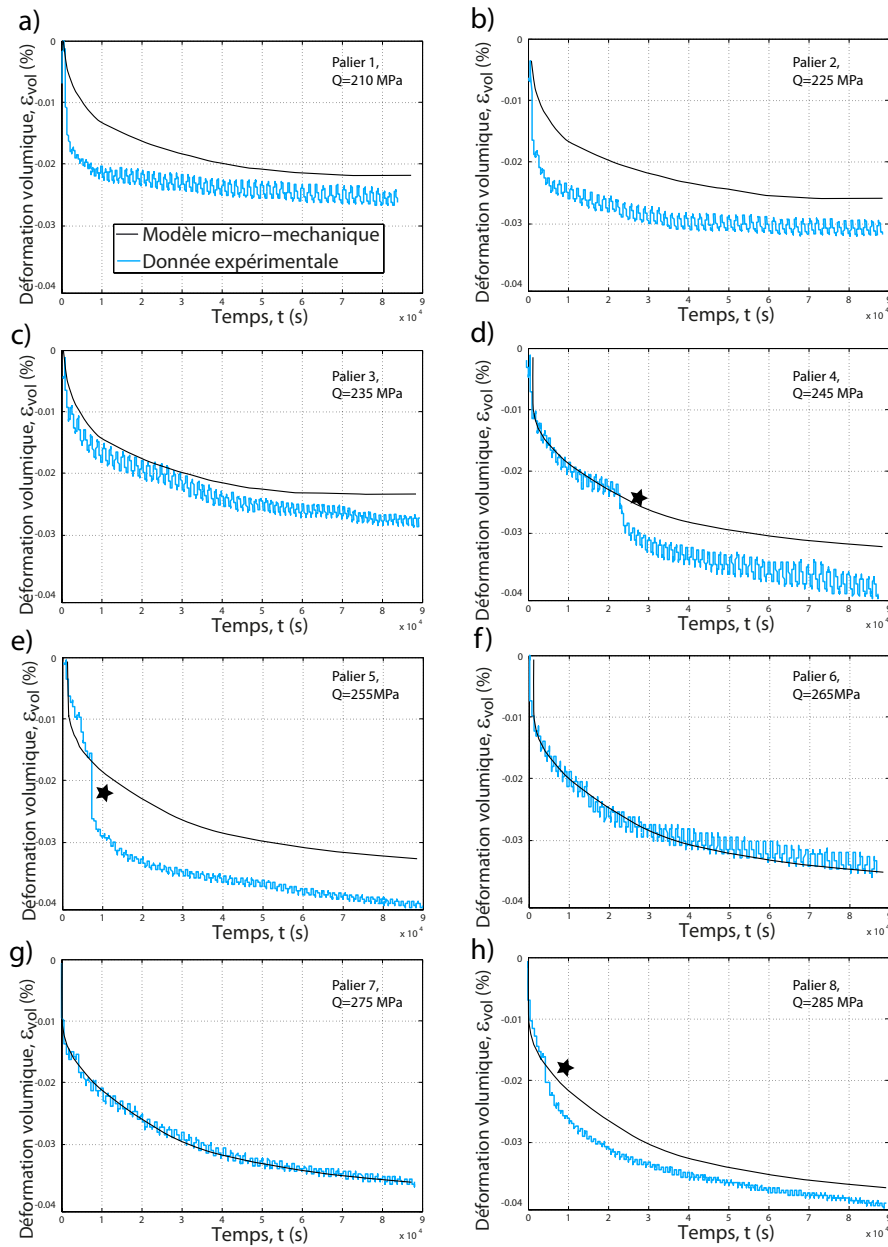


FIGURE 58 – Données de déformation volumique pour l'expérience C7 (courbes bleues) comparées aux prédictions du modèle (courbes noires). La Figure a) représente le premier palier, b) le second,... et h) est le huitième palier. Les sauts de déformations sont indiqués par des étoiles.



## 4.5 Discussion du modèle

### 4.5.1 Rugosité des fissures

ON a pu voir que le modèle ne prédisait pas exactement les déformations des premiers paliers. Cette observation introduit la question de la rugosité des fissures [Kachanov, 1982]. En effet ce paramètre a été ignoré dans la description des fissures. Le fait que les prédictions théoriques sont approximativement bonnes, suggère que l'effet de rugosité est faible dans le verre. Il est pourtant probable que cet effet soit plus important dans les roches.

Pour décrire comment prendre en compte l'effet de rugosité, nous allons supposer la rugosité des fissures constante. La Figure 59 montre comment cet effet pourrait être schématisé. Dans une vue simplifiée, la surface d'une fissure plane est modifiée par des aspérités. Considérer une rugosité constante, signifie alors que les aspérités des fissures ont une hauteur maximale fixe. Ainsi, quand les fissures commencent à se propager. Les aspérités contrôlent l'ouverture. C'est la raison pour laquelle le modèle sous-estime les déformations réellement obtenues. Une fois que la propagation est suffisante, les fissures ne s'ouvrent pas davantage et il n'y a plus de dilatance supplémentaire due à cet effet. Le modèle prédit alors bien les déformations.

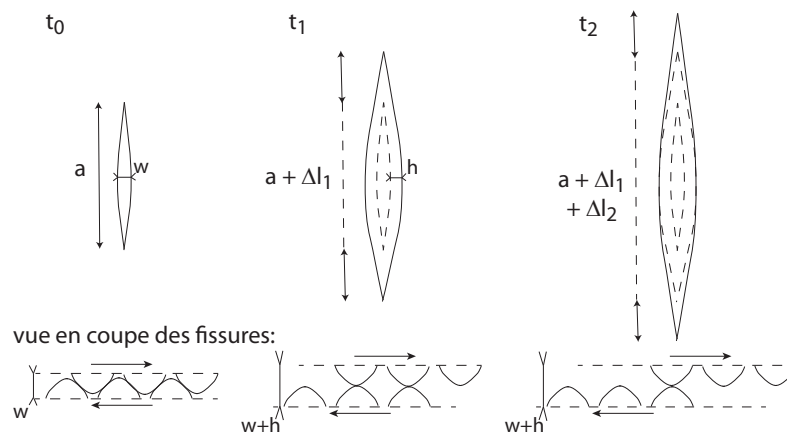


FIGURE 59 – **Effet de la rugosité.** La fissure initiale se propage premièrement avec une augmentation d'ouverture pour laquelle la rugosité intervient ( $t_1$ ). Au delà d'une propagation critique, l'ouverture est telle que la rugosité n'intervient plus. Les fissures se propagent alors avec un facteur de forme constant ( $t_2$ ).

### 4.5.2 Sensibilité de l'énergie d'activation

L'ÉNERGIE d'activation a une forte influence sur la prédiction des déformations à cause de la loi exponentielle. La Figure 60 représente la déformation volumique prédite pour un palier réalisé à  $Q=265$  MPa pour cinq valeurs différentes d'énergie d'activation. L'augmentation d'énergie d'activation a pour effet d'augmenter le temps caractéristique du fluage primaire.

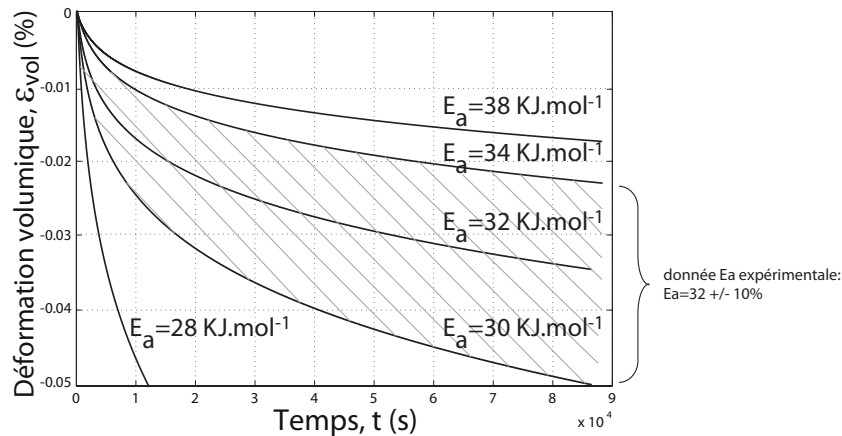


FIGURE 60 – **Effet de la variation d'énergie d'activation.** Résultats présentés pour un palier intermédiaire, à  $Q=265$  MPa. Dans la gamme  $E_a = 30-38$  KJ.mol<sup>-1</sup>, les résultats des prédictions sont en accord avec les données expérimentales. Au delà de cette gamme, les prédictions ont une erreur très importante.

Expérimentalement l'énergie d'activation a été déterminée avec une barre d'erreur de 20% (soit de 29,8 à 35,2 kJ.mol<sup>-1</sup>). On voit alors que si  $E_a \leq 28$  kJ.mol<sup>-1</sup>, ou pour  $E_a \geq 38$  kJ.mol<sup>-1</sup>, la différence entre la valeur prédite et les données expérimentales est supérieure à 60%. Pour  $30 \leq E_a \leq 35$  kJ.mol<sup>-1</sup>, les prédictions sont en accord avec les données, avec une barre d'erreur acceptable de 15%.

On note cependant, que dans le cas des roches, l'incertitude sur  $E_a$  est susceptible d'être très grande, rendant les prévisions de déformation moins fiables. Dans notre cas, les prédictions théoriques étant très proches des données il est possible que l'énergie d'activation soit en réalité connue avec plus de précision.

D'autres paramètres présents dans le modèle, comme le module de Young ou le rayon des fissures ne sont pas discutés car ils n'ont pas d'influence sur la propagation des fissures. En effet, une variation de module de Young est compensée par une variation dans le facteur d'intensité des contraintes. Pour ce qui est du rayon des fissures, si celui-ci est plus petit, la propagation,  $l(t)$ , sera plus petite aussi. Comme  $K_I(t)$  varie en  $l(t)/a$ , une variation de  $a$  sera compensée elle aussi. Le paramètre  $\gamma$  représentant l'influence de l'environnement sera

analysé dans la dernière partie de ce manuscrit lorsque nous aborderons plus en détail l'effet des interactions fluides/verre. Quant au paramètre  $s$ , nous l'aborderons dans le chapitre qui va suivre à propos de comparaison verre/roches.

### 4.5.3 Extrapolation et prédiction à long terme

LA comparaison entre les données et les prédictions du modèle est relativement bonne. Le mécanisme qui contrôle la propagation des fissures semble bien traduit par ce modèle. La question qui suit est alors, peut-on extrapoler à des temps plus longs et des conditions différentes ?

Dans les conditions d'entreposage, les colis de verre sont placés dans des colonnes les uns au-dessus des autres. Dans ces conditions, la pression de confinement effective est nulle ; le chargement axial est (pour le dernier colis tout en bas de la colonne) de 10 colis de 500 kg supportés par une section de 42 cm de diamètre ; la température est encore élevée (300°C). Le réseau de fissure des colis n'étant pas connus, on suppose que les paramètres du verre utilisé ici restent inchangés. On obtient alors les déformations du verre avec le temps, pendant les 100 années d'entreposage (Figure 61).

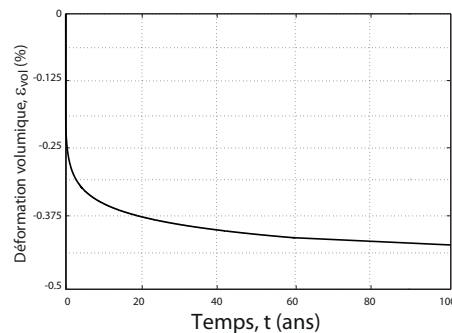


FIGURE 61 – **Prédiction des déformations volumique dans des conditions d'entreposage.**

On note que le fluage secondaire commence autour de 20 ans. La déformation maximale atteinte après 100 ans est seulement de 0,3%. Dans nos expérience de fluage, à cette valeur de déformation, il n'y a jamais eu de déformation catastrophique sur les échantillons à taille réduite. Cette prédiction suppose de connaître parfaitement la géométrie des fissures du colis à échelle 1, ainsi que les contraintes mises en jeu, ce qui n'est pas forcément le cas. Cette extrapolation ne prend pas non plus en compte le conteneur d'acier qui reprend sans doute une certaine partie des déformations. Il faut donc prendre ce résultats comme une première extrapolation avec une barre d'erreur plus ou moins importante.

## Comparaison du comportement du verre et de celui des roches

**E**ST-CE QUE le modèle précédent peut être utilisé dans le cas des roches naturelles ? Nous savons que le verre est un matériau différent car plus simple. Cependant si le fluage des roches fragiles résulte aussi de la croissance sous-critique des fissures, le modèle précédent devrait pouvoir capturer le processus clé. Afin de comparer le comportement du verre et des roches, nous rappelons des résultats expérimentaux que l'on retrouve dans la littérature sur le granit, le grès et le basalte. Nous les comparons à nos résultats de l'expérience C7 (Figures 57 et 62a - points bleus). Les données comparées sont celles de : (i) Lockner [1993], sur le granit de Westerly (expérience réalisée avec une porosité saturée en eau, à température ambiante et à une pression de confinement effective de  $\sigma'_3=20$  MPa). (ii) Heap et al. [2009b], sur le grès Darley Dale et (iii) Heap et al. [2011], sur le basalte du Mont Etna. Ces deux derniers jeux de données proviennent d'expériences effectuées dans des conditions saturées en eau et à température ambiante. La pression de confinement effective est de  $\sigma'_3=30$  MPa. Les taux de déformation volumique peuvent être extraits de ces travaux et sont ajoutés sur la figure 62a. Le granit est représenté par des croix, le grès par des cercles et le basalte par des étoiles.

On voit que la sensibilité du verre à la contrainte différentielle est nettement moins importante que celle des roches. Malgré cette grande différence, on note que la valeur moyenne de la vitesse de déformation dans le verre (entre  $10^{-6}$ - $10^{-7}$  s $^{-1}$ ) est intermédiaire au vu des valeurs observées dans les roches ( $>10^{-6}$  s $^{-1}$  pour le basalte et le grès et  $<10^{-7}$  s $^{-1}$  pour le granit).

La grande différence de sensibilité à la contrainte pourrait impliquer que les comportements du verre et des roches sont différents. Cependant le modèle précédent implique (équation (59)) que la sensibilité à la contrainte est contrôlée par le paramètre  $s$  : la surface élémentaire de propagation des fissures. Dans un verre la valeur de  $3,2 \cdot 10^{-20}$  m $^2$  a

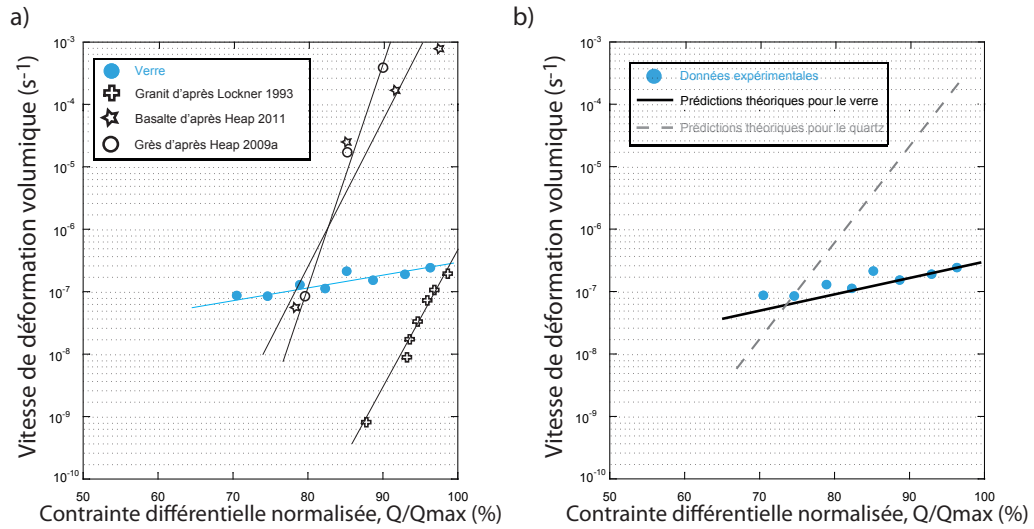


FIGURE 62 – **Comparaison entre verre et roches.** a) Comparaison expérimentale entre le verre (ronds bleus), le basalte (étoiles), le granit (croix) et le grès (cercles). La vitesses des déformations volumiques en fluage secondaire est tracé en échelle logarithmique en fonction de la contrainte différentielle. b) Prédiction théorique de la vitesse de déformation pour le verre et le quartz.

été obtenue à partir de données antérieures [Darot and Gueguen, 1986; Reuschlé, 1989; Guéguen et al., 1990; Meredith, 1990]. Le verre étant amorphe, on imagine que les sauts élémentaires des fissures sont probablement les plus petits possibles. Dans les minéraux, on peut s'attendre à une valeur de  $s$  plus importante influencée par la taille des mailles cristallines. On trouve en effet pour le quartz  $s=4,1 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$  [Reuschlé, 1989; Guéguen et al., 1990; Meredith, 1990]. L'utilisation de cette valeur permet de quantifier l'effet d'une variation de structure. Sur la Figure 62b les prédictions et données du verre sont rappelées. Les prédictions pour le quartz sont ajoutées. On peut s'attendre à un comportement similaire pour d'autres minéraux.

Ce résultat suggère que la différence de sensibilité à la contrainte observée pour le verre et les roches peut s'expliquer par la structure des matériaux. Ce résultat a déjà été observé par Cornelius and Scott [1993]. Dans cette étude les auteurs observent une différence de sensibilité à la contrainte entre les matériaux amorphes (notamment le verre) et les roches. Ils l'interprètent par la variation d'un exposant d'une loi de Charles. Dans notre cas, le modèle présenté permet de décrire exactement cette variation de sensibilité : si on considère un matériau amorphe, la surface élémentaire de propagation des fissures va être la plus faible possible car elle n'est influencée que par la distance inter-atomique. Elle sera plus importante dans le cas d'un matériau cristallin car influencée par la taille des mailles des cristaux. Ainsi, si la surface élémentaire impliquée dans la propagation de la fissure est minimum, la sensibilité à la contrainte sera minimum aussi.

La discussion concernant le paramètre  $s$  suggère que le comportement des roches, peut être décrit par le même modèle que le verre, à condition de considérer la structure cristalline des roches (comme celle du quartz). Le modèle précédent a alors été utilisé avec les données de Heap et al. [2009b] (Figure 63) : des expériences de fluage sur du grès Darley Dale ont été réalisées à température ambiante, à  $\sigma'_3=30$  MPa. Des essais de rupture sont également fournis, ils permettent d'obtenir les paramètres :  $E_0=15$  GPa (module de Young) et  $\mu=0,34$  (coefficient de friction). Le diamètre des fissures est supposé être  $10 \mu\text{m}$  comme dans l'étude de Guéguen and Fortin [2013]. À partir des mesures élastiques de la vitesse des ondes élastiques à pression ambiante [Heap et al., 2009b], une densité de fissure initiale de  $\rho_c=0,68$  est obtenue. À  $\sigma'_3=30$  MPa une valeur raisonnable pour la densité de fissure dans le grès est alors d'environ 0,4 [Fortin et al., 2007]. Cette roche étant principalement faite de quartz, nous utiliserons les paramètres mesuré par Reuschlé [1989] :  $s_{\text{quartz}}=4.1 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$  et  $\gamma_{\text{quartz-eau}}=2.3 \text{ J.m}^{-2}$ .

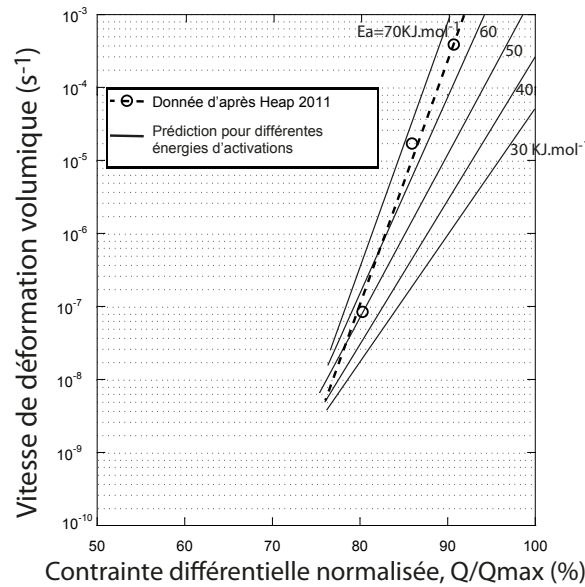


FIGURE 63 – **Vitesse de déformation volumique en fluage secondaire pour le grès Darley Dale.** Les données expérimentales sont extraites de l'étude de Heap et al. [2009b]. La vitesse de déformation prédite pour une énergie d'activation comprise entre 30 et 70  $\text{kJ.mol}^{-1}$  est indiquée.

En supposant une variation de l'énergie d'activation de 30 à 70  $\text{kJ.mol}^{-1}$ , le modèle précédent permet de calculer la vitesse de déformation volumique en fonction de la contrainte (Figure 63). Les données expérimentales sont en bon accord avec le modèle si  $E_a=70 \text{ kJ.mol}^{-1}$ . Il est intéressant de noter que cette valeur est compatible avec la mesure directe réalisée par Dewers and Hajash [1995] sur un grès (avec la même méthodologie que celle utilisée ici sur le verre) :  $E_a=73 \text{ kJ.mol}^{-1}$  ( $\pm 13\%$ ).

L’OBSERVATION des déformations volumiques couplées aux émissions acoustiques a mis en évidence le phénomène lent appelé “brittle creep” dans le verre. Il provient de la propagation sous-critique des fissures. Cette propagation est la cause de l’augmentation stable des déformations.

On observe l’augmentation de ce phénomène avec la contrainte ou en augmentant la température.

Un modèle théorique basé sur une loi physique (exponentielle) décrit la propagation des fissures et les effets des paramètres expérimentaux. En décrivant les contraintes à l’aide d’une géométrie de type “wing-crack” on est capable de prédire les déformations lentes. Comme tous les paramètres de cette loi sont connus, il est possible d’extrapoler ces résultats sur le long terme.

Ces observations et modèles sont comparés aux roches. Bien que celles-ci présentent une sensibilité à la contrainte différente de celle du verre (bien plus forte), on peut tout de même utiliser le modèle. En effet il est possible de justifier cette différence de sensibilité au travers de la structure des matériaux. Ainsi, même si il peut être difficile d’interpréter le fluage fragile (“brittle creep”) dans les roches naturelles du fait de leur structure complexe [Paterson and Wong, 2005], ce modèle décrit les points clés des mécanismes mis en jeu.





## Cinquième partie

# Mécanismes de rupture

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>126</b>
<b>2</b>	<b>Rupture fragile</b>	<b>127</b>
2.1	Rupture en compression . . . . .	127
2.2	Rupture en traction . . . . .	129
2.3	Critère de rupture . . . . .	131
<b>3</b>	<b>Rupture en fluage tertiaire</b>	<b>132</b>
3.1	La rupture observée au cours du temps . . . . .	133
3.1.1	Comparaison des comportements en expérience lente et rapide (expérience C7) . . . . .	133
3.1.2	Effet des paramètres expérimentaux (expérience C8, C17 et C20) . . . . .	134
3.2	Mécanisme de rupture . . . . .	136
3.2.1	Les échantillons <i>post-mortem</i> . . . . .	136
3.2.2	Le réseau de fissures après rupture . . . . .	138
3.2.3	Description du mécanisme . . . . .	140
3.3	Interprétation théorique du temps à la rupture . . . . .	142
3.3.1	Description analytique du temps à la rupture . . . . .	142
3.3.2	Prédiction du temps à la rupture . . . . .	144
3.4	Discussion du modèle . . . . .	145
3.4.1	Influence de la température et sensibilité de l'énergie d'activation . . . . .	145
3.4.2	Effet de la contrainte et extrapolation possible . . . . .	146
<b>4</b>	<b>Critère de rupture complet</b>	<b>148</b>

---

L'OBJECTIF de ce troisième axe d'étude est de détailler la rupture du verre dans toutes les conditions observées (rupture fragile, rupture en fluage tertiaire et rupture en traction). L'intérêt est de mieux comprendre les phénomènes qui peuvent survenir lors de la rupture d'un matériau dans le but de répondre à des problématiques liées à la stabilité de formations géologiques ou de génie civil.

Nous verrons principalement deux types de rupture. Les ruptures brusques (fragiles) et les ruptures progressives (en fluage tertiaire).

Les ruptures brusques apparaissent lorsque la contrainte est augmentée rapidement jusqu'au seuil de résistance maximale de l'échantillon. Dans le cas élastique du verre, on atteint le critère de Mohr-Coulomb que nous avons déjà pu observer pour les verres intacts. Nous verrons ici le comportement du verre fissuré au moment de la rupture. L'évolution de l'enveloppe de rupture sera étudiée par rapport à celle du verre intact. Une rupture en traction un peu particulière sera également documentée.

Les ruptures progressives quant à elles, apparaissent lorsque la contrainte appliquée n'a pas atteint le seuil de résistance maximale, mais que le temps permet à l'échantillon de se déformer et de s'endommager davantage. Dans ce cas, c'est l'endommagement qui atteint un seuil maximal critique et qui entraîne la rupture. Ce type de rupture est très problématique. En effet, après des années de déformations lentes, la rupture peut survenir à tout moment et entraîner par exemple, l'effondrement d'une plateforme pétrolière. Nous l'étudierons donc plus en détail. Nous tâcherons, notamment par l'observation de microstructure d'échantillons *post-mortem*, de comprendre le mécanisme sous-jacent. Nous verrons également que le modèle théorique présenté précédemment dans le cas des déformations lentes peut s'appliquer à ce problème, sous certaines conditions.

LES expériences considérées sont les mêmes que dans le chapitre d'étude préliminaire de la Partie IV. On y ajoute l'expérience C13 qui entraîna suite à un incident technique, une rupture en traction. Ces expériences sont rappelées dans le Tableau suivant :

Tableau 14 – **Récapitulatifs des tests de rupture réalisés en déformation contrôlée.**

Échantillon	État de l'échantillon	$\sigma'_3$ (MPa)	$Q_{max}$ (MPa)
R7T7_C9	TT -300°C	20	465
R7T7_C4	TT -300°C	10	350
R7T7_C12	TT -300°C	5	170
R7T7_C13	TT -300°C	10	0

## 2.1 Rupture en compression

ON rappelle les résultats des tests de rupture réalisés (à taux de déformation contrôlée) sur les verres sains : pour  $\sigma'_3=15\text{MPa}$ , nous avons atteint la rupture autour de  $Q_{max} \simeq 700\text{ MPa}$ . Les résultats des tests C9 et C4 montrent clairement que le seuil de rupture est atteint beaucoup plus vite pour les verres fissurés. En effet, sur ces trois essais, on a atteint la rupture macroscopique du verre respectivement à  $Q=170\text{ MPa}$  à  $\sigma'_3=5\text{ MPa}$ ,  $Q=350\text{ MPa}$  à  $\sigma'_3=10\text{ MPa}$  et  $Q=465\text{ MPa}$  à  $\sigma'_3=20\text{ MPa}$ .

La Figure 64a montre la contrainte différentielle en fonction de la déformation enregistrée pour l'essai réalisé à 10 MPa de pression de confinement effective (C4). Cette fois, la fin de l'expérience est entièrement tracée avec la rupture et le début de la décharge de l'expérience (en pointillé). La rupture macroscopique de l'échantillon est bien visible par une chute de contrainte de 170 MPa. Cette rupture est typique d'une rupture fragile de par sa

brutalité. La Figure 64b montre l'évolution au cours du temps de la contrainte. On observe des petites chutes de contraintes de quelques MPa (indiquées par des flèches) au cours du chargement. Ces chutes apparaissent de plus en plus à mesure que l'on s'approche de la rupture macroscopique de l'échantillon. Elles sont interprétées comme des petites ruptures locales et sont les précurseurs de la rupture macroscopique.

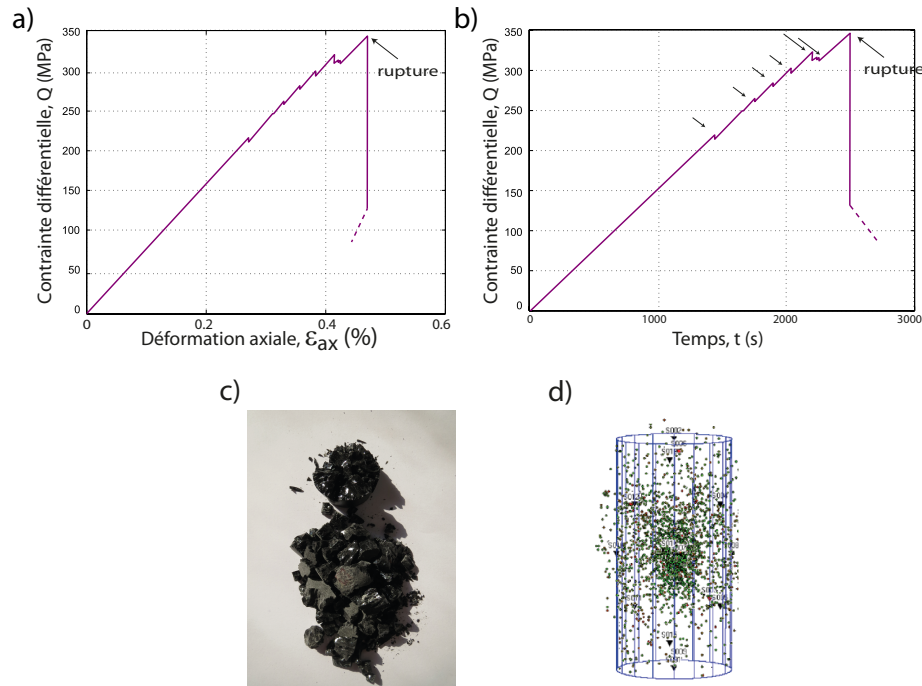


FIGURE 64 – **Rupture fragile d'un échantillon fissuré en compression.** ( $\sigma'_3=10$  MPa, expérience C4). a) Contrainte en fonction de la déformation. b) Évolution de la contrainte (expérience à vitesse de déformation constante) au cours du temps. c) État de l'échantillon *post-mortem*. d) Localisation des EA de l'évènement de rupture.

L'observation de l'échantillon *post-mortem* (Figure 64c) ne montre aucune formation particulière. En effet, l'échantillon ne présente plus aucune cohésion. La rupture fragile l'a complètement broyé et il ne reste plus que quelques blocs et de la poudre de verre. Les EA de l'évènement de rupture ont été localisées utilisant les mesures de vitesses présentées précédemment (Partie IV - section 2.2). La dernière mesure réalisée au plus près de la rupture est considérée. La Figure 64d montre beaucoup de bruit et aucune localisation d'EA suivant un plan distinct. Elle confirme la non-localisation de la déformation lors d'une expérience rapide, sous forme par exemple de bande de cisaillement.

## 2.2 Rupture en traction

L'EXPÉRIENCE 13 devait, à l'origine, être une expérience de fluage. Peut-être son chiffre ne lui a pas porté chance, puisque qu'un accident de chute de pression est survenu. Voici ce qui c'est passé :

La pression de confinement, fixée à 15 MPa et la pression de pore de 5 MPa étant installées (en eau), la contrainte différentielle fut augmentée au premier palier, à 225 MPa. Pendant le palier, sans raison apparente, la contrainte axiale a chuté instantanément jusqu'à 0. Il ne s'agissait pas de la rupture de l'échantillon qui entraînait la chute de contrainte, mais l'inverse : la contrainte a chuté, entraînant des déformations catastrophiques pour l'échantillon.

On a compris plus tard, que cette chute de contrainte était due à la pompe axiale qui a arrêté de réguler la contrainte en récupérant une ancienne consigne d'auto remplissage très rapide (à un débit de 2000 cc). Lorsque la pompe se remplit, elle se rétracte pour récupérer de l'huile dans un réservoir. Habituellement, on déconnecte la pompe de la cellule, et on la connecte au réservoir, pour la remplir. Ici, étant donné qu'elle s'est mise toute seule en remplissage, l'huile qu'elle a récupérée fut celle du piston !

A la question, "pourquoi la pompe récupère toute seule une ancienne consigne ?", nous n'avons malheureusement aucune réponse. Nous pensons à un problème de communication entre les différents systèmes d'acquisition des données et de contrôle des paramètres de pressions. Quoi qu'il en soit, afin d'éviter à nouveau ce problème, des alarmes basses et hautes très proches de la valeur du palier sont fixées. Les système d'acquisition et de contrôle ont été installés sur des ordinateurs séparés. De plus, nous avons remarqué que lorsque les fenêtres de procédure automatique sont fermées, ce genre de problème ne survient jamais. Ainsi une troisième précaution pour éviter ce problème est, une fois le palier atteint, de stabiliser la contrainte de façon manuelle et non par une procédure automatique.

L'échec de cette expérience nous a tout de même fourni un résultat intéressant qui est celui d'une rupture en traction (dynamique). L'échantillon *post-mortem* présente une rupture horizontale caractéristique de ce genre de contraintes appliquées (Figure 65). Le couple de contraintes ressenties par l'échantillon au moment de sa rupture est (0 MPa/15 MPa).

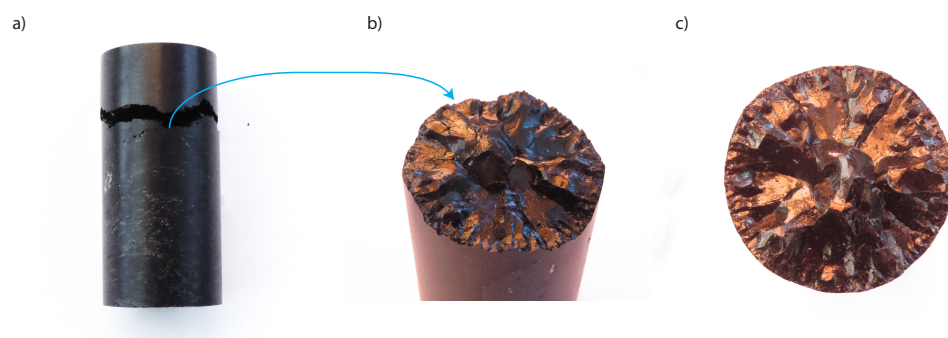


FIGURE 65 – **Photographie de l'échantillon C13.** a) Échantillon entier. b) Vue oblique de la partie basse. c) Vue de face de la zone de rupture (partie basse).

Il est très intéressant d'observer cette rupture. L'allure de la fracture horizontale fait penser à une fissure en plume à 360°.

Les fissures en plume sont observées sur le terrain [Savalli and Engelder, 2005] et sont reproductibles expérimentalement [Jorand et al., 2012] lors d'essai de traction (Figure 66 a et b). D'un point de vue général, ces fissures se forment quand une contrainte de traction se focalisent sur une hétérogénéité [Bahat, 1991]. La fissure se propage alors perpendiculairement à la contrainte et une géométrie constituée d'arc est obtenue (Figure 66c).

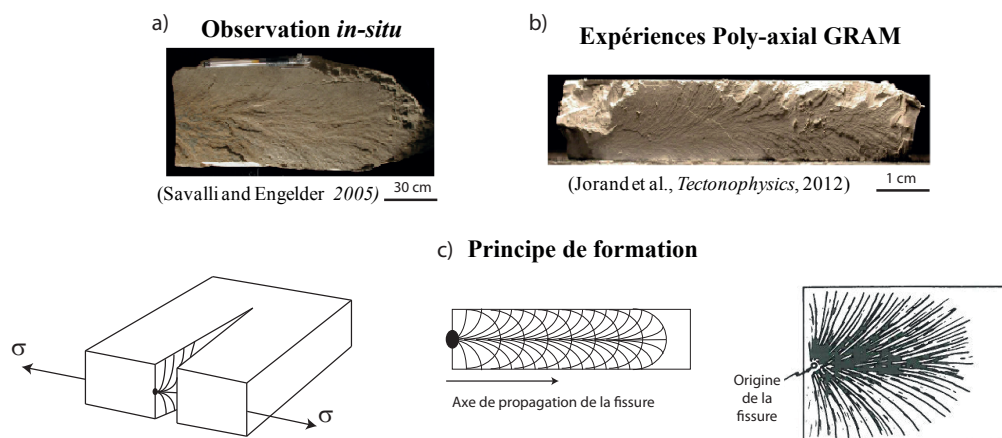


FIGURE 66 – **Fissures plumes observées en laboratoire et sur le terrain.** a) Fissure plume vue sur le terrain. b) Fissure plume obtenue lors d'essai de traction en laboratoire. c) Principe d'initiation, de propagation et vue schématique d'une fissure plume (image modifiée de Bahat [1991]).

## 2.3 Critère de rupture

GRÂCE aux différentes expériences réalisées aux diverses pressions de confinement, il est possible de déterminer l'enveloppe de rupture du verre fissuré. Cette enveloppe est représentée dans un plan de Mohr-Coulomb en fonction des contraintes tangentielle ( $\tau$ ) et normale ( $\sigma_n$ ).

On remarque que pour les trois pressions de confinement considérées les résultats suivent la même tendance. On notera que les tests réalisés à la pression de confinement effective de 10 MPa par Ougier-Simonin et al. [2010] sont ajoutés. Les résultats à la rupture de ces échantillons correspondent à la même enveloppe de rupture. On déduit de ce graphique le coefficient de friction du verre fissuré :  $\mu=0,54$ . On remarque que l'enveloppe de rupture est la même que pour le verre sain (Figure 29). Cette observation a déjà été faite dans du granit [Wang et al., 2013]. Dans cette étude les auteurs montrent qu'avec une représentation de Mohr-Coulomb, les effets d'une fissuration d'échantillon ne se voient pas sur l'enveloppe de rupture. Ainsi, dans le bilan de cette partie, nous montrerons un graphique général de toutes les ruptures obtenues dans un diagramme  $\sigma_1/\sigma_3$  qui nous montrera mieux l'effet de la fissuration et des conditions expérimentales.

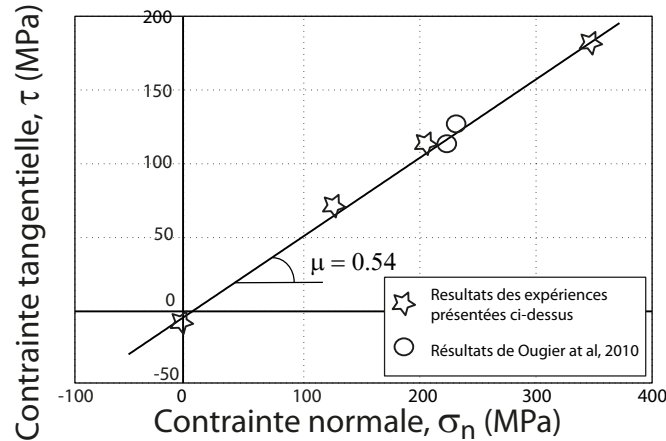


FIGURE 67 – **Enveloppe de rupture du verre fissuré.** Les étoiles représentent les données issues du Tableau 14. Les ronds proviennent des précédents résultats de Ougier-Simonin et al. [2010].

## Rupture en fluage tertiaire

Le protocole expérimental suivi pour réaliser les expériences de fluage présente l'intérêt d'obtenir les déformations lentes au cours du temps pour plusieurs valeurs de contrainte, mais également, de pouvoir observer la rupture de l'échantillon en fluage tertiaire en un temps raisonnablement court (à l'échelle des expériences de laboratoire), inférieur à 24h.

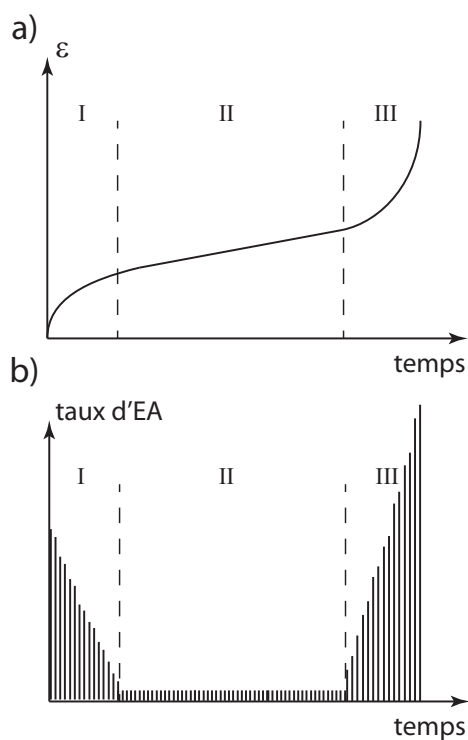


FIGURE 68 – **Courbe de fluage typique présentant les trois stades du fluage.** a) Déformation en fonction du temps à contrainte constante. b) Taux d'émissions acoustiques en fonction du temps.



La rupture correspond au fluage tertiaire, dernière phase du comportement de fluage. Dans cette étape, les déformations cessent de croître de façon stable à vitesse constante. On observe une accélération de la déformation qui amène à une rupture progressive (Figure 68a). Expérimentalement on s'attend à observer avec cette accélération des déformations, une augmentation de l'activité des émissions acoustiques (Figure 68b).

### 3.1 La rupture observée au cours du temps

**N**OUS montrons dans ce chapitre les résultats obtenus pendant le dernier palier des expériences de fluage. Il s'agit des ultimes paliers non-présentés des expériences C7, C8, C17 et C20 de la Partie IV de ce manuscrit.

#### 3.1.1 Comparaison des comportements en expérience lente et rapide (expérience C7)

**A**FIN de comparer le comportement en fluage au comportement en essai de rupture en déformation contrôlée, nous nous intéressons tout d'abord au résultat de l'expérience C7 dont les conditions sont identiques à celles de l'expérience C4. On rappelle que l'expérience C7 est réalisée à température ambiante et à pression de confinement de 15 MPa. Le fluide de pore utilisé est de l'eau ( $P_P=5$  MPa, soit une pression de confinement effective de  $\sigma'_3=10$  MPa). La contrainte axiale du dernier palier où la rupture a eu lieu est  $Q_{max}=295$  MPa.

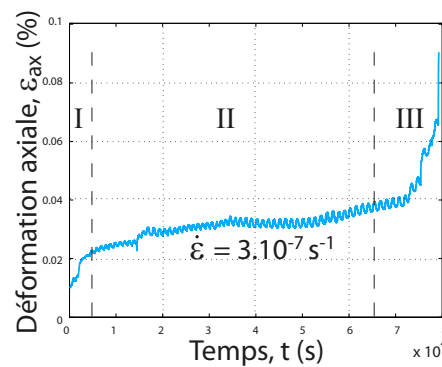


FIGURE 69 – **Déformation axiale au cours du temps pendant la rupture en fluage.** Trois zones sont identifiées correspondant aux trois phases du fluage. On note la vitesse de déformation en fluage secondaire de  $3.10^{-7} s^{-1}$ . Le temps à la rupture observé expérimentalement est de 22h13.

En condition de fluage, la déformation axiale au cours du temps (Figure 69) montre un comportement différent de ce qui a pu être observé lors des tests de rupture rapide. Trois

domaines peuvent être distingués I, II et III qui correspondent respectivement au fluage primaire, secondaire et tertiaire. Dans le premier domaine, I, on observe une augmentation relativement rapide de la déformation. Ce domaine est assez court en temps (jusqu'à  $t=5.10^3$  s). Ce domaine est suivi par le domaine II, où la vitesse de déformation devient constante ( $\dot{\epsilon}=3.10^{-7}$  s $^{-1}$ ). Enfin, le domaine de temps III, commence lorsqu'un endommagement critique est atteint. Dans cette dernière partie, l'augmentation de la vitesse des déformations résulte en la rupture de l'échantillon en fluage tertiaire. Cette rupture est la fin d'un processus progressif.

### 3.1.2 Effet des paramètres expérimentaux (expérience C8, C17 et C20)

LES effets de la pression de confinement et de la température sont discutés ici du point de vue des déformations et du temps à la rupture. La Figure qui suit présente l'évolution de la déformation axiale au cours du temps pour les expériences C8, C17 et C20.

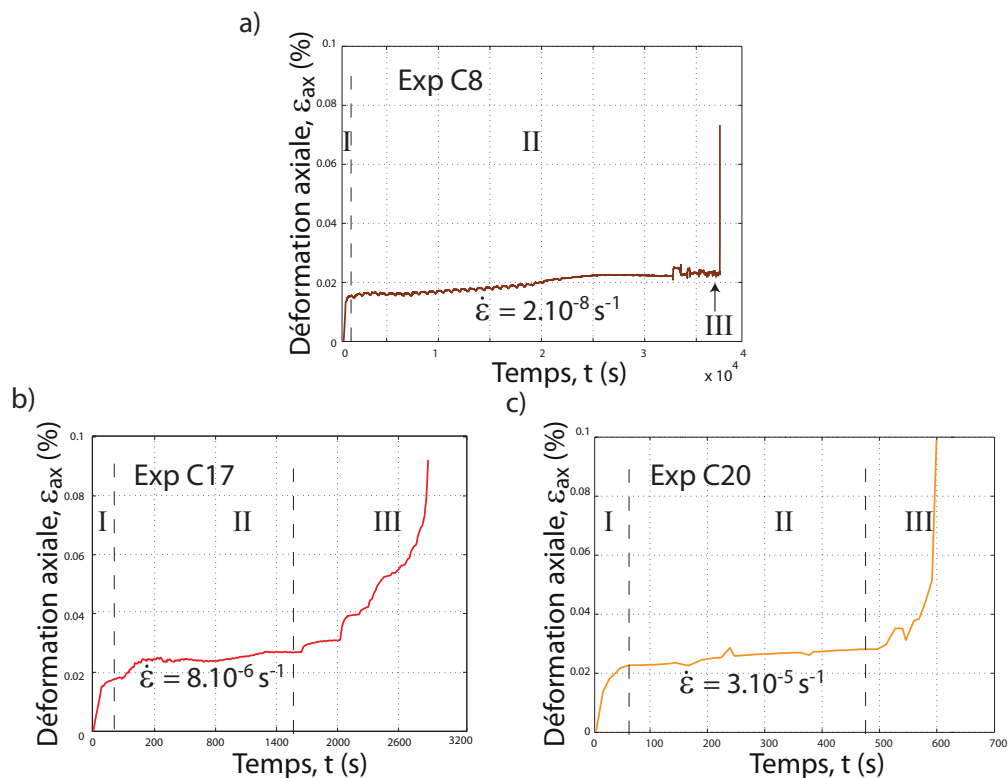


FIGURE 70 – Déformation axiale au cours du temps pendant la rupture en fluage pour différents paramètres expérimentaux. a) Expérience C8 à pression de confinement plus élevée ( $\sigma'_3=20$  MPa). b) et c) Expérience C17 et C20 à température plus élevée (respectivement, 50°C et 70°C).

### Effet du chargement mécanique

L'effet de la pression de confinement est analysé en comparant les expériences C7 (réalisée à  $\sigma'_3=10$  MPa) et C8 (réalisée à  $\sigma'_3=20$  MPa). Dans cette seconde expérience de fluage, les conditions de température et de fluide de pore sont identiques à la première. Du fait de la pression de confinement plus élevée, la contrainte axiale est également plus élevée. Le dernier palier comportant la rupture arrive après 10 paliers à  $Q_{max}=450$  MPa. La rupture est observée après 10h09.

On voit sur la Figure 70a qu'à la pression de confinement de  $\sigma'_3=20$  MPa, le fluage primaire est quasi-inexistant : le domaine I dure environ 1 min, contre 8 pour l'expérience C7. Ramené aux temps de rupture correspondants, pour l'expérience C7, la partie I dure trois fois plus que pour l'expérience C8. La vitesse de déformation pendant le domaine II (fluage secondaire) est bien plus faible à pression de confinement plus élevée ( $\dot{\epsilon}=2.10^{-8} \text{ s}^{-1}$  pour l'expérience C8, contre  $3.10^{-7} \text{ s}^{-1}$ , pour l'expérience C7). Finalement, le domaine de la rupture se produit en un temps très court (domaine de temps III quasi-inexistant lors de l'expérience C8). Les déformations montrent une rupture brusque. Il n'y a plus vraiment d'augmentation progressive. Cependant on parle tout de même bien de rupture en fluage car la contrainte reste constante.

### Effet de température

Les troisième et quatrième expériences de fluage présentées ici (expériences C17 et C20), sont réalisées à la même pression de confinement et dans les mêmes conditions de fluide de pore que l'expérience de base (C7), mais à température plus élevée :  $50^\circ\text{C}$  pour l'expérience C17 et  $70^\circ\text{C}$  pour l'expérience C20. Pour l'expérience C17, le dernier palier arrive à  $Q_{max}=280$  MPa. La rupture est observée à 0h48. Pour l'expérience C20, le dernier palier est  $Q_{max}=310$  MPa, et le temps à la rupture est enregistré à 0h10.

On observe sur les Figures 70b et c, une augmentation de la vitesse de déformation avec la température (domaine II) : de  $3.10^{-7} \text{ s}^{-1}$  à  $20^\circ\text{C}$  (expérience C7), à  $8.10^{-6} \text{ s}^{-1}$  et  $3.10^{-5} \text{ s}^{-1}$ , respectivement à  $50^\circ\text{C}$  et  $70^\circ\text{C}$  (expérience C17 et C20). Le domaine III de la rupture présente un comportement similaire à l'expérience C7 avec une rupture progressive. On note la diminution du temps à la rupture avec la température (la contrainte axiale étant pour ces trois expériences dans un domaine semblable correspondant à une dispersion statistique du comportement du verre fissuré, spécifiquement  $Q_{max}=295, 280$  et  $310$  MPa, respectivement pour C7, C17 et C20).

## 3.2 Mécanisme de rupture

L'OBSERVATION des échantillons récupérés après la rupture (*post-mortem*) va nous permettre dans cette section de comprendre le mécanisme qui amène cette rupture si particulière en fluage tertiaire.

### 3.2.1 Les échantillons *post-mortem*

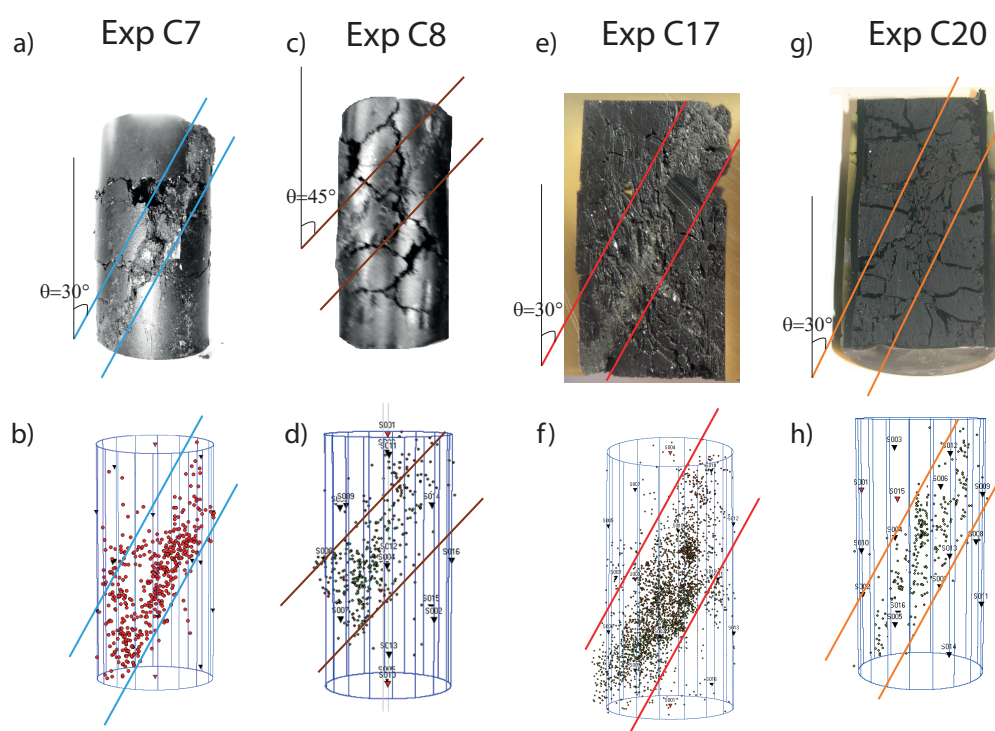


FIGURE 71 – Photographies des échantillons *post-mortem* (ligne du haut) et localisation des EA durant l'évènement de rupture (ligne du bas). De gauche à droite, expériences C7, C8, C17 et C20. Des traits parallèles mettent en évidence sur chaque figure la zone de rupture.

CONSIDÉRANT dans un premier temps l'expérience de fluage de base (C7), on remarque sur la Figure 71a, que l'échantillon *post-mortem* présente une bande de cisaillement oblique où le verre semble réduit en poudre. Une fine couche de gouge y est formée. Il ne nous a pas été possible de pousser plus loin l'observation de cet échantillon car son manque de tenue ne nous a pas permis de le conserver.

Les vitesses utilisées pour calculer la localisation des émissions acoustiques sont rappelées dans le Tableau 15. Elles correspondent à la dernière mesure réalisée au plus proche de la rupture. Elles proviennent des graphiques présentés dans la Partie IV, chapitre 3.

Le résultat de la localisation des EA (Figure 71b) pendant l'évènement de rupture montre plus clairement la formation du plan de cisaillement incliné. Cette localisation est en accord avec l'observation faite sur l'échantillon *post-mortem*.

Couplant cette observation aux résultats de déformation, on retient qu'en condition de fluage, la rupture de l'échantillon, (i) est un phénomène progressif et, (ii) est localisée dans un plan de cisaillement ce qui n'est pas le cas lors d'une rupture rapide en déformation contrôlée.

Tableau 15 – **Dernières mesures de vitesses réalisées avant la rupture des échantillon en fluage tertiaire (m/s).**

	$V_P(\text{radial})$	$V_P(45^\circ)$	$V_P(\text{axial})$	$V_{SH}(\text{radial})$	$V_{SV}(\text{radial})$
Exp C7	5420	5525	5950	1900	2000
Exp C8	5150	5400	5800	2200	2300
Exp C17	4830	5310	6000	1950	2100
Exp C20	4700	5050	6000	2140	2210

### Effet de la pression de confinement

A pression de confinement plus élevée, malgré le comportement des déformations un peu différent (domaine de temps III très court et pas d'accélération progressive des déformations), l'échantillon *post-mortem* présente tout de même une rupture localisée dans un plan incliné (Figures 71c et d), montrant que le comportement reste le même. On peut définir l'angle de ce plan par rapport à l'axe de symétrie du cylindre. On obtient un angle de  $45^\circ$  qui est plus important qu'à pression plus faible (expérience C7 :  $30^\circ$ ). Cette observation est due à un effet classique de Mohr-Coulomb où l'angle de rupture augmente avec la pression de confinement. On remarque aussi une diminution des vitesses due à l'augmentation de l'endommagement à ce niveau de contrainte plus élevée.

On peut alors résumer les effets de l'augmentation de la pression de confinement et du chargement axial par (i) une diminution du temps à la rupture (de 22h13 pour l'expérience C7 à 10h09 pour l'expérience C8), (ii) un comportement similaire représenté par une rupture localisée dans un plan de cisaillement mais, (iii) une rupture plus soudaine sans accélération progressive des déformations.

### Effet de la température

À température plus élevée, la plan incliné de la rupture est toujours observé (Figures 71e et g). Nous discuterons plus tard la microstructure de l'échantillon C17 qui a pu être récupéré du fait de sa meilleure tenue. À première vue on voit déjà sur la Figure 71e, qu'en dehors de la zone de rupture, une majorité de fissures verticales semblent être présentes. La localisation des EA (Figures 71f et h) montrent aussi la localisation de la zone de rupture. Ces Figures sont réalisées à partir des vitesses présentées dans le Tableau 15. On remarque que ces vitesses diminuent avec la température bien que cette fois, le niveau de contrainte soit similaire. Cette diminution indique un endommagement supplémentaire apporté par l'augmentation de température.

Dans cette gamme de température, le mécanisme de rupture ne varie pas. En effet, le même plan de rupture avec un angle similaire est observé. La température a un effet mécanique qui accélère le phénomène de fluage : la vitesse de déformation est plus rapide et le temps à la rupture est plus court.

#### 3.2.2 Le réseau de fissures après rupture

L'OBSERVATION de l'échantillon *post-mortem* de l'expérience C17 (pression de confinement de 15 MPa, température de 50°C) a été réalisée selon le même principe que l'étude de microstructure de ce début de manuscrit, mis à part que nous n'avons à notre disposition qu'une coupe verticale de l'échantillon complet et une vue radiale du haut d'un demi-cylindre. Ainsi, la coupe verticale est observée au MEB. Des images de la surface sont réalisées avec un zoom de  $\times 60$ . Ensuite la mosaïque de la section complète est reconstituée en collant les images bord à bord (Figure 72a). Deux zooms sont mis en évidence : le premier en dehors de la zone de rupture (Figure 72b) et le second dans la zone de rupture (Figure 72c).

Dans la section complète on voit que l'échantillon est clairement divisé en trois zones : la zone de rupture et deux zones de part et d'autre. La zone de rupture est une zone complètement broyée. Cette zone ressemble d'ailleurs à ce qui est observé lors des expériences de ruptures classiques : le verre y est réduit à l'état de poudre. La zone de rupture est une gouge de 7 mm d'épaisseur en moyenne. Hors de la zone de rupture les fissures semblent être, en majeure partie, verticales. Pour s'en convaincre, la Figure 72d représente le réseau de fissures après traitement d'image de la section complète. Sur cette image on peut compter (Figure 73a) et classer en fonction de leur orientation toutes les fissures. La densité de

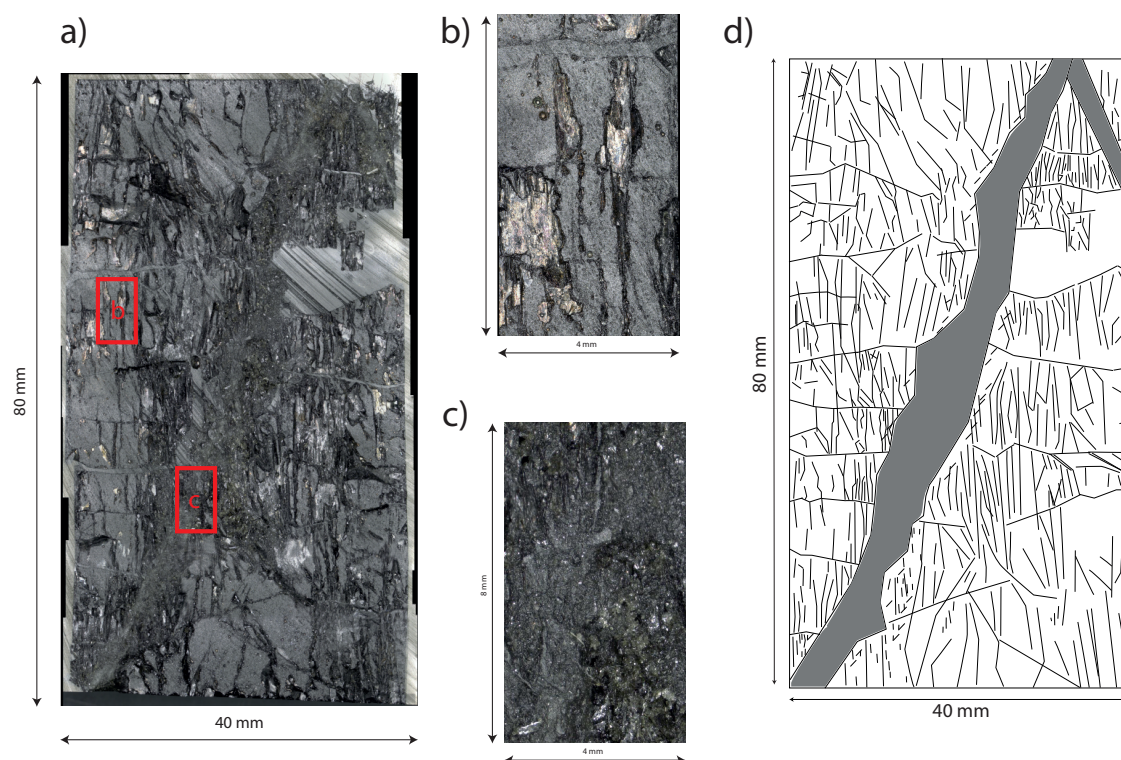


FIGURE 72 – Image MEB de l'échantillon *post-mortem* de l'expérience C17. a) Mosaïque de la section verticale complète. b) et c) Zooms hors et dans la zone de rupture. d) Après traitement d'image, mise en évidence du réseau de fissures.

fissure orientée est représentée sur la rosace (Figure 73b). Une large proportion de fissures verticales y est observée.

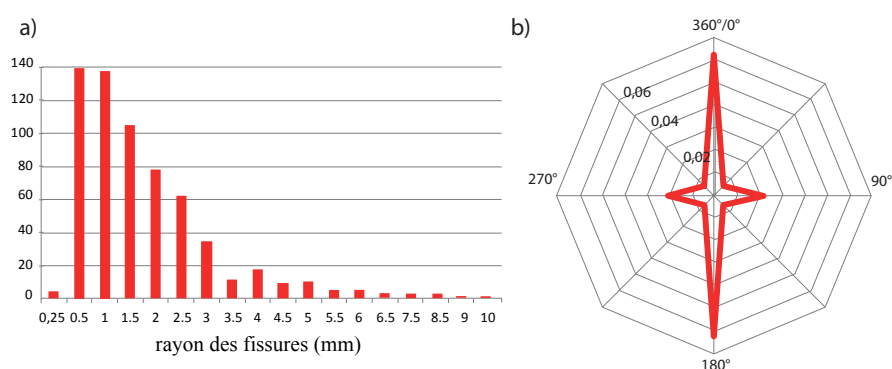


FIGURE 73 – Répartition des fissures de l'échantillon *post-mortem* C17. a) Histogramme des rayons des fissures. b) Densité de fissure orientée correspondante.

Nous faisons la même hypothèse qu'en Partie III : observant la coupe verticale, on mesure toutes les fissures horizontales et on en déduit la densité de fissure horizontale globale à tout l'échantillon :  $\alpha_3=0,044$ . Avec les mesures de vitesses (Tableau 15), on obtient une densité de fissure horizontale de  $\alpha_3=0,06$ . Soit 36% d'erreur dû à l'hypothèse de NIA. Il n'est

pas possible d'obtenir avec cette coupe la densité de fissure verticale par la microstructure. Les vitesses cependant indiquent  $\alpha_1=0,27$ . Soit  $\rho_c = \alpha_1 + 2\alpha_3=0,39$ .

La Figure 74 est une photographie de la partie supérieure de l'échantillon C17 *post-mortem*. Seulement la moitié de cette section est visible car le cylindre a été coupé en deux pour avoir la section verticale. À cause de la taille de cet échantillon, il n'a pas pu passer au MEB, ainsi la précision d'observation des fissures n'est pas optimale. Cependant, le réseau de fissure est clairement visible. Après avoir vectorisé cette image (Figure 74b), on peut compter et mesurer les fissures (Figure 74c). On en déduit la densité de fissure globale verticale de l'échantillon :  $\alpha_1=0,21$ . Soit  $\rho_c=0,30$ .

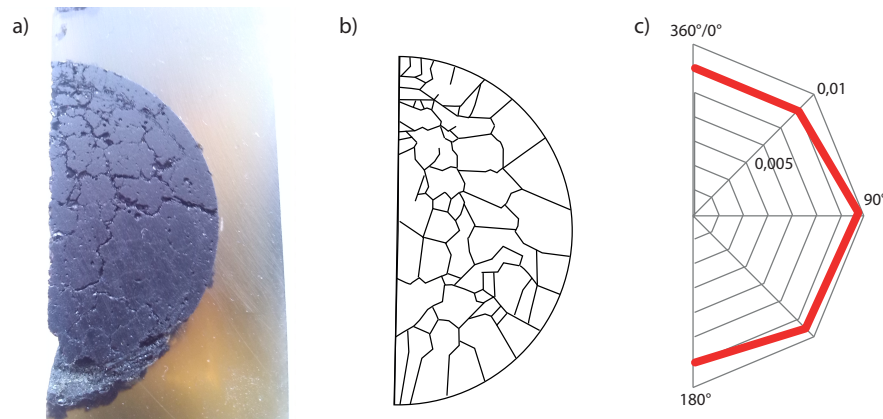


FIGURE 74 – Réseau de fissure horizontal de l'échantillon *post-mortem* C17. a) Photographie du haut du cylindre. b) Réseau de fissure obtenu. c) Densité de fissure orientée.

Il est à noter, que cette mesure est approximative, car la photographie n'a pas la même précision que l'image faite au MEB. Cependant, une autre méthode, approximative elle aussi, peut permettre de valider ce résultat. En effet, il faut considérer l'anisotropie de l'échantillon. Celle-ci peut se décrire par les mesures de vitesses et les paramètres de Thomsen :  $\varepsilon=0,18$  ;  $\gamma=0,19$  ;  $\delta=0,30$ . Si on considère que la densité de fissure conserve cette anisotropie, alors on peut calculer  $\alpha_1$  à partir de  $\alpha_3$  déterminé par la microstructure. On trouve alors,  $\alpha_1=0,20$ . Soit une densité de fissure globale de  $\rho_c=0,29$ . Cette valeur est cohérente avec celle obtenue d'après la Figure 74.

### 3.2.3 Description du mécanisme

L'OBSERVATION du réseau de fissures *post-mortem* nous permet de développer le processus de fluage en trois étapes présenté en Partie IV, chapitre 4 :

- À faible chargement, les fissures ne peuvent pas se propager car la force d'ouverture n'est pas assez importante pour dépasser le confinement.



- À contrainte plus élevée -mais toujours en-deçà du seuil de résistance maximale-, une propagation sous-critique des fissures se met en place. Cette propagation est verticale. Parce que l'état de contrainte n'est pas suffisamment élevé, la propagation des fissures est stable. En effet, à ce stade les fissures se propagent pour libérer la contrainte emmagasinée, mais comme celle-ci n'est pas trop importante, les fissures se propagent un peu, puis s'arrêtent.
- Finalement, le troisième et dernier stade arrive une fois que la longueur des fissures a atteint un seuil critique. Ce seuil correspond au début des interactions entre les fissures. De telles interactions, entraînent une accélération de la propagation des fissures, puis, la rupture en fluage tertiaire. On notera plus loin,  $l_c$  la longueur de fissure critique du seuil d'interaction.

La rupture est alors localisée justement à cause des interactions. En effet, il a été montré par Ashby and Hallam [1986] que la géométrie la plus favorable à la propagation des fissures est le plan incliné. On comprend alors tout le processus de propagation sous-critique des fissures entraînant des interactions entre fissures, elles-même entraînant la rupture macroscopique localisée de l'échantillon (Figure 75).

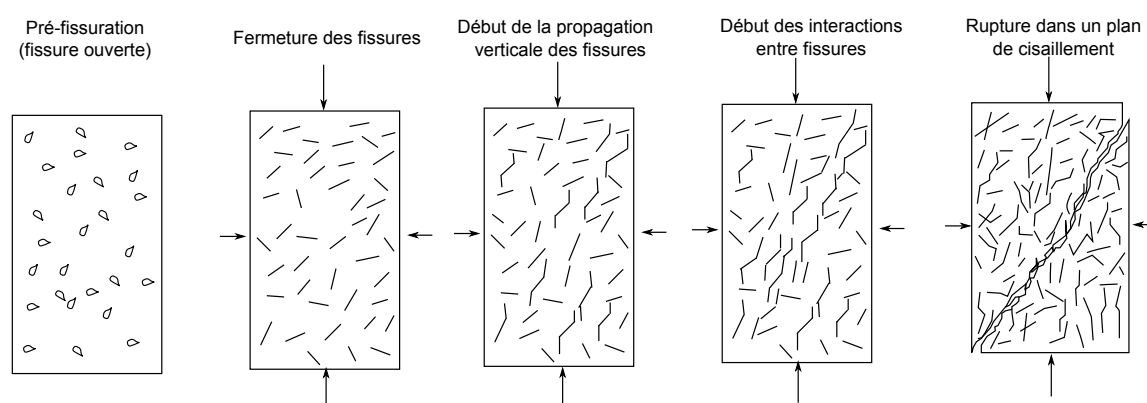


FIGURE 75 – **Processus de propagation des fissures en fluage fragile.** La propagation sous-critique des fissures entraîne des interactions entre fissures, qui elles-même entraînent la rupture macroscopique localisée de l'échantillon

On remarque qu'une fois que le processus d'interaction a commencé, la rupture arrive ensuite très vite (domaine de temps III du fluage tertiaire très court). Les fissures verticales observées en-dehors de la zone de rupture sur l'échantillon *post-mortem* sont un témoin de la propagation sous-critique verticale des fissures.

### 3.3 Interprétation théorique du temps à la rupture

LE modèle présenté dans la partie IV sur le fluage secondaire est réutilisé ici avec la description des contraintes selon une géométrie de fissure de type “wing-crack” :

$$K_I = \frac{F_w}{[\pi(l(t) + \beta a)]^{3/2}} - \frac{2}{\pi}(\sigma'_3 - \sigma'_i)\sqrt{\pi l(t)}. \quad (72)$$

Étant dans une phase de fluage tertiaire où les interactions entre fissures ne sont plus négligeables, la simplification faite sur le facteur d'intensité des contraintes,  $K_I$  n'est plus possible de cette façon. Ici, les contraintes d'interactions sont à prendre en compte et sont même prédominantes. Ainsi le facteur d'intensité des contraintes peut être approximé par :

$$K_I = \frac{2}{\pi}(\sigma'_i - \sigma'_3)\sqrt{\pi l(t)}. \quad (73)$$

On rappelle la loi de propagation sous-critique des fissures :

$$\frac{dl}{dt} = l_0 e^{\frac{-E_a}{RT}} e^{\frac{s}{kT} \left( \frac{K_I^2}{E} - 2\gamma \right)} \quad (74)$$

#### 3.3.1 Description analytique du temps à la rupture

L'ÉQUATION différentielle en  $l(t)$  apportée par les équations (73) et (74) est toujours très complexe du fait du lien entre  $l(t)$  et la distance intra-fissure,  $d$ . Cette distance apparaît dans l'écriture de  $\sigma'_i$  :

$$\sigma'_i = \frac{F_w}{S - \pi(l(t) + \cos(\psi)a)^2}, \quad (75)$$

$\psi$  représente l'angle d'orientation des fissures (Figure 54) ;  $S$  représente la surface moyenne perpendiculaire à  $\sigma'_3$  de chaque fissure [Brantut et al., 2012], c'est en quelque sorte une densité de fissure mais avec une dimension de surface. Ainsi,  $[S - \pi(l + \cos(\psi)a)^2]^{(1/2)}$  représente la distance moyenne inter-fissures, que l'on choisit de noter  $d(t)$ . Cette quantité varie inversement avec  $l(t)$ .

Une simplification appropriée est de considérer les contraintes d'interaction constantes. Ceci signifie qu'on suppose que ce qui gère le processus de rupture est la contrainte d'interaction au moment où les fissures commencent à se propager. À ce moment là, la longueur des fissures est  $l_c$ . Alors,  $d = d_c$ . Pour supposer une contrainte d'interaction constante, nous supposons dans l'écriture de  $\sigma'_i$ , que  $d$  est constant et prend la valeur de  $d_c$ . On a donc :

$$\sigma'_i = \frac{F_w}{(d_c)^2}, \quad (76)$$

Cette approximation n'est pas irréaliste. En effet, nous avons remarqué que le domaine de temps III qui correspond à la propagation de la rupture est très court. Les fissures interagissent beaucoup quand elles sont suffisamment proches. La valeur physique finale de  $l(t)$  sera proche de (et légèrement supérieure à)  $l_c$ . Ainsi l'erreur sur le calcul du temps à la rupture sera faible.

Considérant une contrainte constante, on peut noter,  $\sigma' = \sigma'_i - \sigma'_3$ . Cette simplification a déjà été proposée notamment dans l'étude de Vanel et al. [2009]. L'équation (73) devient alors :

$$K_I = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \sigma' \sqrt{l(t)}, \quad (77)$$

avec,

$$\sigma' = \frac{(A_1 \sigma'_1 - A_3 \sigma'_3) a^2}{d_c^2} - \sigma'_3. \quad (78)$$

On rappelle que  $A_1$  et  $A_3$  dépendent tous deux du coefficient de friction du matériau,  $\mu$ . Ainsi  $\sigma'$  est bien une constante vis-à-vis de  $l(t)$ . Combinant l'équation (77) avec l'équation (74), à  $\sigma'_1$ ,  $\sigma'_3$  et  $T$ , constants, l'équation (74) peut s'écrire :

$$\frac{dl}{dt} = \frac{\lambda}{\tau} e^{l(t)/\lambda}. \quad (79)$$

Les expressions de  $\lambda$  et  $\tau$  sont :

$$\lambda = \frac{\pi E_0 k T}{4 s \sigma'^2}, \quad (80)$$

et

$$\tau = \frac{\lambda}{l_0} \exp\left(\frac{E_a + 2\gamma s}{kT}\right), \quad (81)$$

La solution exacte à cette équation différentielle simplifiée est de la forme :

$$l(t) - l_c = -\lambda \ln\left(1 - \frac{t}{\tau}\right). \quad (82)$$

On note que  $l(t)$  diverge quand  $t$  tend vers  $\tau$ . Cette divergence mathématique est le résultat de la précédente approximation. Physiquement cette divergence représente la rupture globale de l'échantillon. L'équation (81) donne en fait une borne supérieure au temps à la rupture.

Les conditions expérimentales de l'expérience C7 sont tout d'abord considérées pour tester la validité de cette description du temps à la rupture. La longueur critique des fissures est fixée à  $l_c=3,2$  mm qui est la propagation des fissures obtenues en fluage secondaire après les 8 paliers précédant le neuvième avec le fluage tertiaire (Figure 56c).

### 3.3.2 Prédiction du temps à la rupture

**S**UR la Figure 76a, l'évolution de  $l(t)$  est représentée selon l'équation (82) selon les conditions de l'expérience C7. On note que l'approximation faite sur le facteur d'intensité des contraintes ne permet pas de décrire mathématiquement le fluage primaire.

Le temps à la rupture, décrit théoriquement par  $\tau$ , est prédit à 23h35 pour les conditions expérimentales de l'expérience C7. Il représente une surestimation de +6,4% comparé au résultat expérimental de 22h10. Cette surestimation est cohérente avec la simplification de  $K_I$  qui décrit une borne supérieure pour le temps à la rupture. Cette surestimation de 6,4% est faible et représente une barre d'erreur tout à fait acceptable justifiant l'utilisation de cette approximation. Les interactions entre fissures, processus principal qui régit la rupture en fluage tertiaire, sont décrites de façon acceptable au moyen de l'approximation faite.

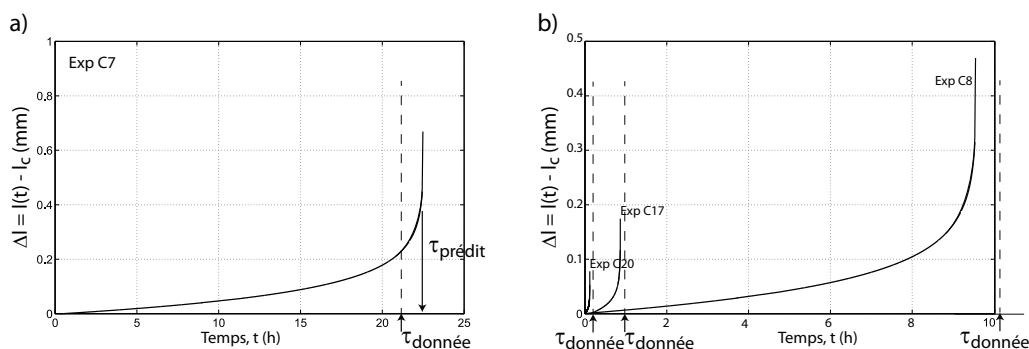


FIGURE 76 – **Prédiction théorique du temps à la rupture.** a) Avec les conditions expérimentales de l'expérience C7. b) Avec les conditions expérimentales des expériences C8, C17 et C20.

Le temps à la rupture a été également prédit dans le cas des trois autres expériences (Figure 76b). On obtient pour les expériences C17 et C20, un temps à la rupture prédit de 0h52 et 0h12 correspondant à une surestimation respectivement de +8,3% et +8,8%. La barre d'erreur est légèrement plus élevée que pour l'expérience C7 mais reste acceptable. Cependant, pour l'expérience C8, le temps à la rupture prédit, est de 9h40. Ce qui représente une erreur de -4,8%. Il y a donc sous-estimation. Notons que ce résultat paradoxal correspond à une erreur très faible de 4,8%. Il peut provenir d'une petite erreur sur la déter-

mination de  $l_c$  qui est un paramètre expérimental difficile à déterminer. Nous discuterons ensuite de l'influence des paramètres expérimentaux ainsi que de certains paramètres du modèle servant à expliquer les variations observées.

Avec une barre d'erreur maximale de  $\pm 7\%$ , le modèle simplifié prédit avec précision les données expérimentales. Chaque prédiction est en bon accord avec les temps à la rupture observés.

### 3.4 Discussion du modèle

DANS ce qui suit, nous présentons une discussion de certains paramètres importants du modèle. Les effets de la variation des conditions expérimentales telles que la température ou la contrainte sont décrits afin d'estimer une extrapolation possible à des conditions de stockage.

#### 3.4.1 Influence de la température et sensibilité de l'énergie d'activation

Sur la Figure 77a on représente la variation du temps à la rupture en fonction  $\sigma'$  pour différentes températures (de 10 à 100°C). La prédiction théorique montre une chute rapide du temps à la rupture avec l'augmentation de la température (à contrainte fixée).

Les résultats des expériences C7, C17 et C20 sont indiqués par des points connaissant le temps à la rupture mesuré et la température correspondante. On observe que la rupture arrive toujours dans la même gamme de contrainte :  $\sigma' = 15 - 22$  MPa qui correspond à une contrainte d'interaction de  $\sigma'_i = 25 - 32$  MPa. Cette contrainte d'interaction correspond à une gamme de  $l_c$  comprise entre 2,9 et 3,5 mm (soit  $\pm 10\%$ ). Cette incertitude sur  $l_c$  peut nous permettre de justifier la prédiction de C8 qui sous-estimait le temps à la rupture au lieu de le sur-estimer comme l'approximation l'implique.

Les effets de la température dépendent de l'énergie d'activation. La Figure 77b montre qu'une incertitude de  $\pm 10\%$  (la valeur initiale est représentée par la courbe à  $E_a = 32 \text{ kJ.mol}^{-1}$ ), modifie largement les prédictions. En se fixant à  $\sigma' = 18$  MPa (valeur mesurée pour l'expérience C7 sur la Figure 77a), on trouve un temps à la rupture prédit entre 2 et 375 h avec la variation d'énergie d'activation. Dans le cas du verre, nos prédictions théoriques ayant une erreur bien plus faible par rapport aux données expérimentales, on peut en déduire que notre précision sur l'énergie d'activation est en réalité plus grande.

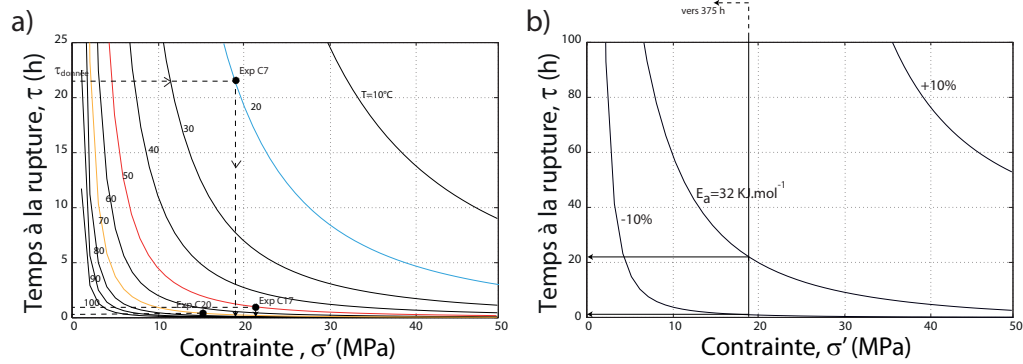


FIGURE 77 – Effet de la température (a) et de l'énergie d'activation (b) sur la prédiction du temps à la rupture prédit.

### 3.4.2 Effet de la contrainte et extrapolation possible

Si on considère une température constante (20°C) et les paramètres de l'expérience C7, les effets de la contrainte axiale peuvent être prédits. Ils sont décrits au travers de  $\sigma'$  dans les équations (78) à (82). La Figure 78a rapporte  $\tau(\sigma'_3)$  pour  $\sigma'_1=305$  MPa et pour une valeur de contrainte plus élevée :  $\sigma'_1=470$  MPa. Le résultat de 23h35 est retrouvé pour la pression de confinement effective de 10 MPa et pour le chargement de  $\sigma'_1=305$  MPa (comme pour l'expérience C7). On observe que le temps à la rupture prédit augmente avec la pression de confinement et diminue avec la contrainte axiale. On note qu'à la pression de confinement effective de 20 MPa et le chargement de  $\sigma'_1=470$  MPa (comme pour l'expérience C8), le temps à la rupture de 9h40 est retrouvé comme dans la section précédente.

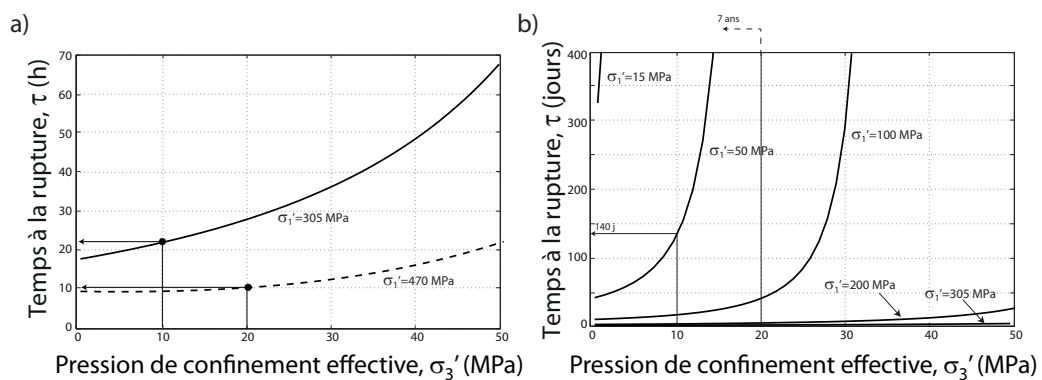


FIGURE 78 – Effet de la pression de confinement et de la charge axiale. (à différentes échelles)

Dans des conditions géologiques, on s'attend à une valeur de  $\sigma'_1$  plus faible. La Figure 78b rapporte  $\tau(\sigma'_3)$  pour des temps plus longs et des contraintes plus faibles. À la contrainte  $\sigma'_1=50$  MPa, le temps à la rupture est de 140 jours pour un confinement effectif de 10 MPa.

Ce temps à la rupture devient bien plus important pour  $\sigma'_3=20$  MPa ( $\simeq 7$  ans).

Cette extrapolation doit être considérée avec prudence pour deux raisons. Le temps à la rupture est défini à partir de  $l_c$  (fixé ici à 3,2 mm). On doit donc ajouter à  $\tau$ , le temps nécessaire à atteindre  $l_c$ , si on veut connaître toute la durabilité d'une structure. Aussi, dans des conditions de stockage géologique, l'état de contrainte est différent de nos expériences triaxiales. Ce point est à prendre en compte si on veut une extrapolation plus réaliste.

## Critère de rupture complet

LES conditions de rupture de tous nos échantillons, quelque soient leurs conditions expérimentales et leur protocole, ont été déterminées. Les informations concernant la résistance mécanique en général du verre fissuré sont rassemblées dans le Tableau 16. Dans ce Tableau, on rappelle dans un premier temps les résultats de cette thèse auxquels on ajoute les résultats des autres études réalisées sur le verre [Ougier-Simonin et al., 2010; Dubé et al., 2010] :

Tableau 16 – **Récapitulatif des résistances maximales atteintes quelque soit le type d'expérience.**

Échantillon	État initial	Test réalisé	$\sigma'_3$	$\sigma'_1$
R7T7_C2	VS	rupture	5 MPa	526 MPa
R7T7_C9	TT	rupture	20 MPa	485 MPa
R7T7_C4	TT	rupture	10 MPa	360 MPa
R7T7_C12	TT	rupture	5 MPa	175 MPa
R7T7_C7	TT	fluage	10 MPa	305 MPa
R7T7_C8	TT	fluage	20 MPa	470 MPa
R7T7_C17	TT	fluage	10 MPa	290 MPa
R7T7_C20	TT	fluage	10 MPa	320 MPa
R7T7_O6	VS	rupture	15 MPa	680 MPa
R7T7_O4	TT	rupture	10 MPa	345 MPa
R7T7_O8	TT	rupture	10 MPa	265 MPa
R7T7_D1	VS	uniaxial	0 MPa	265 MPa
R7T7_D2	VS	uniaxial	0 MPa	143 MPa
R7T7_D3	VS	uniaxial	0 MPa	208 MPa

Si on rassemble tous ces résultats dans un graphique représentant l'enveloppe de rupture dans un plan contrainte différentielle/contrainte moyenne, on obtient la Figure 79.



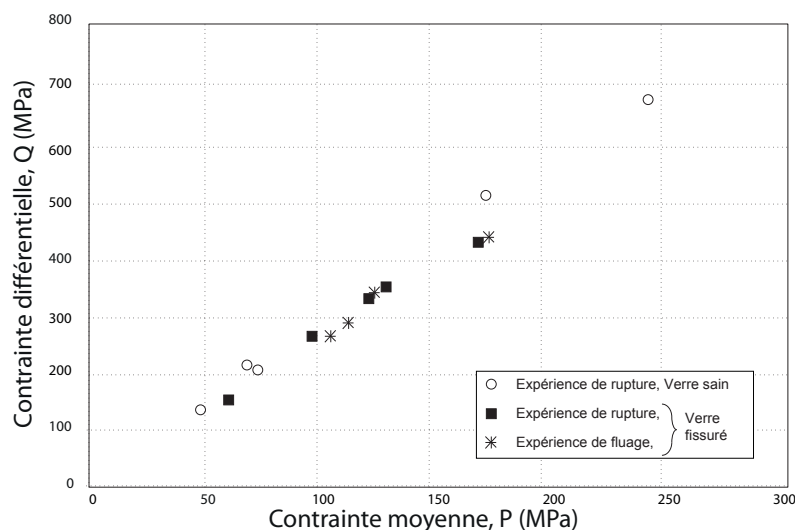


FIGURE 79 – **Enveloppe de rupture du verre en diagramme P/Q, complétée par tous les cas de figure.** Les cercles représentent les ruptures survenues sur les échantillons de verre sain, les carrés sont les ruptures obtenues lors des tests de rupture, sur échantillons fissurés, et enfin, les étoiles représentent les ruptures d'échantillons fissurés ayant subi une expérience de fluage.

Comme on a pu l'observer avec l'enveloppe de Mohr-Coulomb, l'effet de fissuration et des conditions expérimentales ne modifient pas l'enveloppe de rupture. Pourtant, expérimentalement, on voit bien une différence entre un verre sain qui casse à plus de 500 MPa pour 10 MPa de confinement, et un verre fissuré qui casse pour la même pression de confinement aux alentours de 300 MPa. Pour ce rendre compte de cet effet et voir aussi si il y a une variation de la résistance du verre fissuré entre les cas d'expériences de rupture classique et de fluage, la Figure 80 est proposée. Elle représente dans un plan  $(\sigma_1/\sigma_3)$  la rupture du verre dans tous ces états.

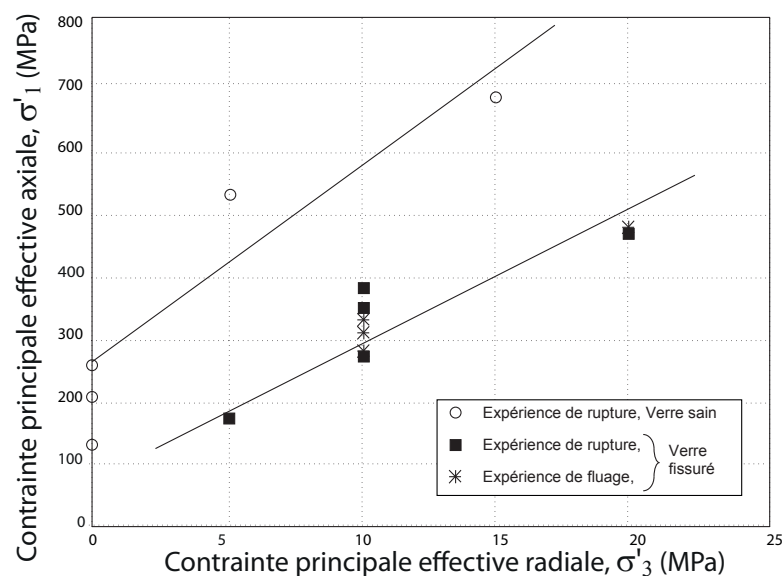


FIGURE 80 – **Enveloppe de rupture du verre dans un plan ( $\sigma_1/\sigma_3$ ), complété par tous les cas de figure.** Les cercles représentent les ruptures survenues sur les échantillons de verre sain, les carrés sont les ruptures obtenues lors de tests de rupture, sur échantillons fissurés, et enfin, les étoiles représentent les ruptures d'échantillons fissurés ayant subi une expérience de fluage.

Grâce à cette seconde enveloppe, on visualise mieux la diminution de résistance entre le verre sain et le verre fissuré. Pour ce dernier cependant, peu de différence est notée entre les ruptures fragiles et progressives. Il semble que le verre présente une forte résistance mécanique quelque soit son endommagement.

L’OBSERVATION de l’aboutissement des expériences de fluage a permis de mettre en évidence un mécanisme de rupture différent en présence de propagation sous-critique des fissures. Expérimentalement on observe une rupture progressive traduite par une accélération des déformations. Ce mécanisme particulier a pour effet de présenter une rupture localisée selon un plan incliné. On comprend en observant la microstructure des échantillons *post-mortem* que la propagation sous-critique verticale des fissures entraîne des interactions particulières entre ces fissures. Le modèle micro-mécanique décrivant la propagation des fissures peut-être simplifié par une hypothèse simple, considérant que les interactions entre fissures sont le processus majeur qui contrôle la rupture en fluage tertiaire. Cette simplification nous permet d’obtenir une solution analytique exacte pour décrire le temps à la rupture à partir de paramètres physiques bien connus.

La comparaison entre le modèle et les résultats expérimentaux permet de valider nos hypothèses. En effet, les quatre expériences considérées sont bien décrites par la prédiction théorique du temps à la rupture. Ceci nous permet alors d’extrapoler ces résultats à des conditions différentes et des échelles de temps plus long.

On remarque qu’aucune discussion sur le paramètre  $\gamma$  n’a été proposée ni dans cette partie ni dans la précédente. Cette abstraction est volontaire. En effet ce paramètre décrit la sensibilité des fissures à la présence d’un fluide de pore. Dans la partie qui va suivre, nous traiterons en détail cet aspect et discuterons alors de l’effet de  $\gamma$ .



## Sixième partie

# Corrosion sous contrainte

---

<b>1</b>	<b>Introduction</b>	<b>154</b>
<b>2</b>	<b>Comparaison des effets mécanique et chimique</b>	<b>157</b>
2.1	Effet mécanique : comparaison des expériences réalisées à sec (C6) et saturé en eau minérale (C7) . . . . .	157
2.2	Effet chimique : comparaison des expériences réalisées en eau minérale (C7) et en eau pure (C21, C22) . . . . .	158
2.2.1	Mise en évidence d'une corrosion chimique . . . . .	158
2.2.2	Comportement en présence d'une corrosion chimique . . . . .	163
2.3	Comparaison des effets mécanique et chimique . . . . .	165
<b>3</b>	<b>Expériences complémentaires</b>	<b>167</b>
<b>4</b>	<b>Interprétation en terme de fissuration</b>	<b>169</b>
4.1	Surface fissurée . . . . .	169
4.2	Perméabilité et densité de fissure . . . . .	170

---

L'OBJECTIF de ce quatrième et dernier axe d'étude est d'amorcer une observation des interactions fluides/fissures dans le verre. Cette thématique présente un grand intérêt. D'une part dans le cas des verres, nous avons dit en introduction générale, que ce matériau avait été choisi pour le traitement des déchets radioactifs pour sa faible sensibilité à la corrosion. On trouve cependant dans la littérature le détail des réactions chimiques possibles entre le verre et l'eau [Oelkers, 2001; Ferrand et al., 2006; Criscenti et al., 2006]. Il est aussi décrit qu'au contact d'un fluide chimiquement réactif, les propriétés du verre peuvent changer : un gel protecteur peut apparaître en surface [Gehrke et al., 1991; Chave et al., 2007; Rebiscoul et al., 2007] ; ou bien, une zone à plus haute porosité peut se développer [Deruelle et al., 2000; Techer et al., 2001; MacQuarrie and Mayer, 2005]. Nous allons tester ici, à quel point il peut y avoir, ou non, une influence du fluide de pore sur la propagation des fissures dans le verre à notre échelle de temps. D'autre part, les interactions fluides/fissures sont intéressantes à étudier pour de nombreux problèmes de réservoir, que ce soit pour la géothermie ou les réservoirs à hydrocarbures [Milsch et al., 2011; Milsch and Priegnitz, 2012; Schepers and Milsch, 2013]. Également, en géoscience la présence de fluide est importante car elle peut influencer la stabilité de certaines formations, comme au niveau des zones de subduction avec notamment des prismes d'accrétions [Pons and Leroy, 2012].

Dans cette partie, un nouvel aspect est abordé. Il s'agit de la géochimie du verre en présence d'eau. Ce point n'est pas étudié en profondeur pour l'instant. Il faut garder en mémoire que cette section fut la dernière abordée et correspond à une étude préliminaire ouvrant des perspectives sur des capacités à réaliser ou non des expériences de corrosion dans le verre.

Nous allons chercher à comprendre la part des effets mécaniques des contraintes appliquées et des effets chimiques du fluide de pore sur le comportement des fissures. Il est

alors nécessaire de préciser ce que l'on entend dans cette partie, par l'effet "mécanique" ou "chimique" de la présence d'un fluide dans les fissures. L'effet chimique fait référence à une réaction entre le fluide et le matériau. Cette réaction change la composition du matériau. On s'attend alors à voir une variation de ses propriétés et de son comportement. Pour le second effet, l'effet mécanique, nous ne parlons pas ici de l'effet classique dû aux contraintes appliquées. Nous comprenons par l'effet mécanique de la présence d'un fluide le fait que le fluide induit une diminution de la tension de surface [Orowan, 1944]. Dans cette étude, l'effet mécanique fait référence, en quelque sorte, à une diminution de la résistance des fissures.

Dans un premier temps nous considérons une expérience de fluage réalisée avec un échantillon sec (expérience C6). Elle sera comparée à une expérience de fluage réalisée avec un échantillon saturé par fluide inerte pour le verre (eau minérale). Il s'agit de l'expérience C7, déjà présentée. Nous rappelons que ce fluide est choisi pour être à l'équilibre face aux éléments du verre. Ce cas de non-corrosion sera comparé à un cas de corrosion (expérience C21 et C22) où le fluide considéré est de l'eau pure (eau distillée puis dé-ionisée). Ce fluide représente le pire des cas pour le verre car cette eau cherche à se minéraliser en dissolvant le verre. Dans ce cas, le circuit de pore sera ouvert : une pression de pore de 4 MPa est appliquée en bas de l'échantillon et le haut est à pression ambiante (il y a donc une pression de pore moyenne de 2 MPa dans l'échantillon). Ce dispositif de circuit de pore ouvert, présente trois avantages. Le premier est la mesure en continu de la perméabilité ; le second est d'être sûr de toujours injecter de l'eau pure. En effet, si il y a bien corrosion, le fluide se chargera en élément du verre jusqu'à ne plus être corrosif. Le circuit ouvert évite ceci ; le dernier avantage est le fait de pouvoir récupérer le fluide de pore en sortie du circuit, après qu'il ait traversé l'échantillon. Ainsi, des échantillons d'eau pure pourront être analysés (mesure de pH ou de composition) afin de suivre l'évolution de la corrosion chimique du verre.

Tableau 17 – **Récapitulatif des tests de fluage considérés dans cette étude.** Les tests sont réalisés à température ambiante sur des échantillons fissurés.

Échantillon	Fluide de pore	$P_P$	$\sigma_3$ (MPa)	$\sigma'_3$ (MPa)
R7T7_C6	sec (gaz argon)	5 MPa	15	10
R7T7_C7	eau minérale	5 MPa	15	10
R7T7_C21	eau pure (circuit ouvert)	4-0 MPa	12	10
R7T7_C22	eau pure (circuit ouvert)	4-0 MPa	12	10

L'intérêt des tests de fluage est de comparer l'effet mécanique de la présence d'un fluide de pore (en comparant le cas sec et saturé en eau minérale) à l'effet chimique dû à la

corrosion (en comparant le cas saturé en eau minérale et l'expérience saturée en eau pure). Pour cela, nous mettrons tout d'abord en évidence la présence d'une corrosion dans les cas des expériences C21 et C22, le pH et la composition de l'eau pure ayant été mesurés en sortie d'échantillon. La microstructure de l'échantillon C21 qui a été récupéré avant la rupture sera aussi détaillée. Nous comparerons ensuite les déformations et vitesses des trois premières expériences de fluage.

L'idée générale de cette partie est de voir si il y a une corrosion possible à notre échelle de temps, si elle a un effet sur le comportement du verre, et si cet effet est plus ou moins important que l'effet mécanique dû à la présence d'un fluide dans les fissures.



## Comparaison des effets mécanique et chimique

### 2.1 Effet mécanique : comparaison des expériences réalisées à sec (C6) et saturé en eau minérale (C7)

L'EXPÉRIENCE C6 et C7 ont été réalisées respectivement avec de l'argon et de l'eau minérale comme fluide de pore. Le cas saturé en argon est considéré comme étant le cas sec. Dans ces deux expériences, les conditions de température et de contraintes sont les mêmes ( $P_C=5$  MPa, température ambiante). Dans ces expériences aucune corrosion chimique n'est attendue. Les déformations et les vitesses mesurées lors de l'expérience C7 ne sont pas rappelées ici. Nous renvoyons à la Partie IV de ce manuscrit et aux Figures 42 et 43. Pour le cas sec (expérience C6) la Figure 81 montre les déformation volumiques obtenues (a) ainsi que les vitesses mesurées au cours de l'expérience (b).

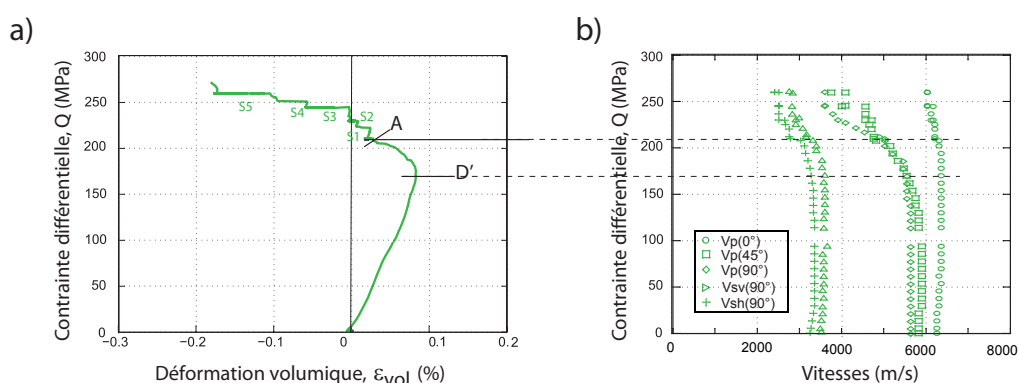


FIGURE 81 – **Comportement en fluage de l'expérience C6 réalisée en condition sèche (échantillon saturé à l'argon).** a) Contrainte différentielle en fonction de la déformation volumique. b) Contrainte différentielle en fonction de la vitesse des ondes élastiques.

Pendant l'expérience C6, les déformations volumiques montrent un comportement li-

néaire jusqu'au seuil D' (à  $Q=170$  MPa). Au delà de ce seuil la dilatance apparaît et devient, palier après palier, prédominante sur la compaction. la dilatance totale atteinte est de -0.18% (on rappelle que dans le cas saturé en eau minérale, la dilatance atteinte est de -0.42%). On voit sur les vitesses qu'au début de l'expérience, toutes les vitesses sont dans la même gamme (autour de 6000 m/s pour les ondes P et 3300 m/s pour les S). Leur distribution est  $V_P(0^\circ) > V_P(30^\circ) > V_P(45^\circ) > V_P(90^\circ) > V_{SV}(90^\circ) > V_{SH}(90^\circ)$ . Ensuite, au-delà du seuil D', les vitesses chutent. L'anisotropie se développe et on trouve une grande différence entre les vitesses axiales et radiale (2200 m/s de différence entre les vitesses P axiale et radiale). On rappelle que dans le cas saturé en eau minérale, les vitesses voient moins cette variation d'anisotropie puisqu'un écart de 1200 m/s est mesuré.

L'effet mécanique étudié ici est due à la présence d'un fluide de pore dans les fissures. Il s'agit d'un fluide non-réactif chimiquement avec le matériau. Les résultats expérimentaux présentés ici, indiquent que la présence d'un fluide non-réactif augmente les déformations lentes et l'endommagement d'un échantillon (comparé à un cas sec). Cette observation est en bonne corrélation avec la loi de propagation sous critique des fissures que nous avons étudiée :

$$\frac{dl}{dt} \propto e^{\frac{s}{T}(K_I^2/E-2\gamma)}, \quad (83)$$

La présence d'un fluide de pore réduit la tension de surface entre le verre et le fluide,  $\gamma$  [Orowan, 1944]. En effet il a été montré dans la littérature, que  $\gamma$  diminue avec un fluide [Reuschlé, 1989; Meredith, 1990]. En inversant notre modèle on trouve une valeur de  $\gamma$  dans le cas sec de  $\gamma_{sec}=1,3 \text{ J.m}^{-2}$ . Cette variation de  $0,3 \text{ J.m}^{-2}$  entre le cas sec et saturé est cohérent avec les valeurs que l'on peut trouver dans d'autres matériaux, comme dans les grès par exemple [Clark et al., 1980; Fortin et al., 2007].

## 2.2 Effet chimique : comparaison des expériences réalisées en eau minérale (C7) et en eau pure (C21, C22)

### 2.2.1 Mise en évidence d'une corrosion chimique

LES expériences C21 et C22 sont des expériences de fluage en condition saturée en eau pure. Le chemin de contrainte est le suivant : la pression de pore est de 4 MPa en bas de l'échantillon, et 0 en haut (soit une pression de pore moyenne de 2 MPa). La pression de confinement est de 12 MPa, pour conserver une pression effective semblable à toutes les autres expériences ( $\sigma'_3=10$  MPa). Le circuit de pore est ouvert permettant d'injecter

toujours de l'eau pure et de pouvoir la récupérer en sortie du circuit de pore. Ainsi, le flux d'eau pure est installé avec un gradient de 4 MPa/8 cm. La composition de l'eau pure n'est pas à l'équilibre chimique avec le verre et une corrosion chimique est attendue. C'est ce que nous allons montrer tout d'abord dans cette section.

### a. Pendant l'expérience C21

Pendant l'expérience C21, le pH du fluide de pore en sortie de circuit est mesurée à chaque palier. La contrainte différentielle est augmentée au premier palier, à 210 MPa. Une succession de 10 paliers est réalisée. L'observation de l'évolution du pH avec le temps (Figure 82) montre que le pH originel de l'eau pure est de 6,9. Après 24 h de corrosion, le pH a augmenté à 7,6. Le jour d'après il est à 8,4. Il restera à cette valeur pendant toute la durée de l'expérience.

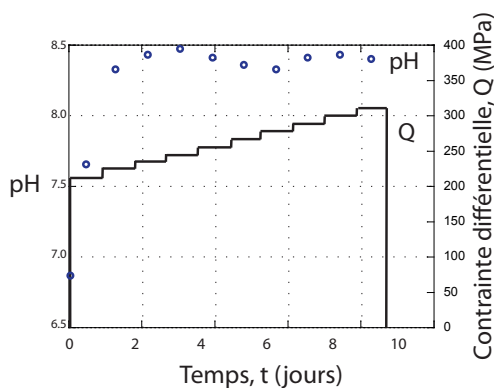


FIGURE 82 – Évolution du pH de l'eau pure mesuré en sortie de l'échantillon. Expérience C21.

Après les 10 paliers, la rupture n'est pas attendue, la contrainte est redescendue et l'échantillon est récupéré. On le coupe alors selon l'axe vertical afin d'observer le réseau des fissures endommagées par le fluage et la corrosion. Comme dans chacune de nos observation au MEB, des images à un grossissement de  $\times 60$  sont réalisées puis collées bord à bord pour reconstituer la mosaïque complète de la section (Figure 83a). Le sens de la circulation du fluide est indiqué par une flèche. On voit sur cette section que l'échantillon est entièrement fissuré. On voit aussi les fissures initiales radiales qui n'ont pas variées.

Quatre zooms sont réalisés sur des fissures de tailles différentes : deux en haut de l'échantillon (b) et deux en bas (c). En comparant les lèvres des fissures du bas et du haut de l'échantillon on voit que leurs surfaces sont différentes. En bas de l'échantillon, là où l'eau pure est injectée, les bords des fissures sont plus irréguliers et font apparaitre une rugosité plus importante. Cet endommagement irrégulier entre le bas et le haut de l'échantillon est cohérent avec le fait que la corrosion due à l'eau pure commence par le bas de l'échantillon

et devient de moins en moins importante à mesure que l'eau se charge en particule de verre et remonte vers le haut. Il faut noter que cette observation est à considérer avec prudence. En effet, pour être vraiment sûr, il faudrait faire une étude statistique des bords des fissures dans toute la section verticale. Également, une mesure des vitesses radiales à différentes hauteurs aurait pu montrer si la variation d'endommagement est significative ou non. Cependant ces données n'ont pas pu être obtenues avec précision.

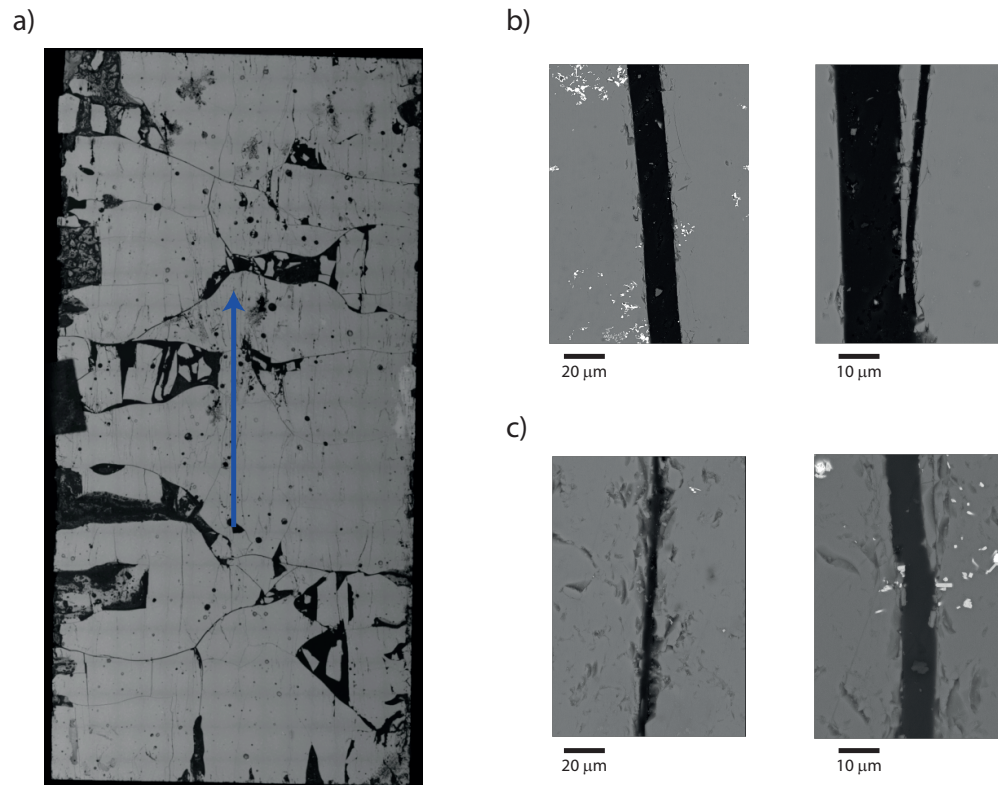


FIGURE 83 – **Microstructure de l'échantillon issu de l'expérience C21.** a) Vue entière de toute la section verticale. b) zoom sur des fissures de tailles différentes pris en haut de l'échantillon. c) de même, avec des fissures vues en bas de l'échantillon.

#### b. Densité de fissure d'un échantillon endommagé

Ce paragraphe sert de parenthèse mais aussi de conclusion à l'étude de l'évolution de la microstructure du réseau de fissure.

La Figure 83 a été vectorisée (Figure 84a) afin d'obtenir la densité de fissure orientée (Figure 84b) et ainsi apporter une précision quant à notre étude de microstructure. Ainsi nous avons pu observer le réseau de fissure initial, en cours d'endommagement par propagation sous-critique des fissures, et après une rupture en fluage tertiaire.

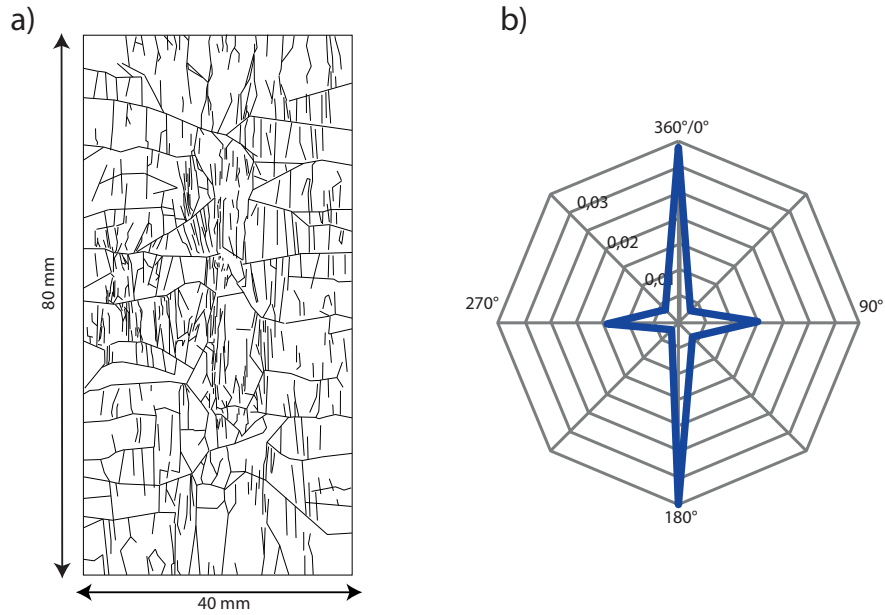


FIGURE 84 – Réseau de fissure de l'échantillon issu de l'expérience C21. a) Vue entière de toute la section verticale. b) densité de fissure orientée.

Comme pour l'échantillon C17, nous n'avons accès ici qu'à une image MEB de la section verticale. Elle nous permet d'observer la propagation verticale des fissures, et d'obtenir la densité de fissure horizontale globale :  $\alpha_3=0,03$ . Avec les mesures de vitesses (présentées plus loin) on trouve la densité de fissure horizontale,  $\alpha_3=0,038$ . Soit 27% d'erreur. Les vitesses nous indiquent aussi que  $\alpha_1=0,25$ . Soit  $\rho_c=0,33$ .

Une photographie de la vue horizontale a été faite (Figure 85a). Vectoriser cette image (Figure 85b), nous donne la densité de fissure (Figure 85c) verticale de tout l'échantillon :  $\alpha_1=0,20$ . Soit  $\rho_c=0,26$ .

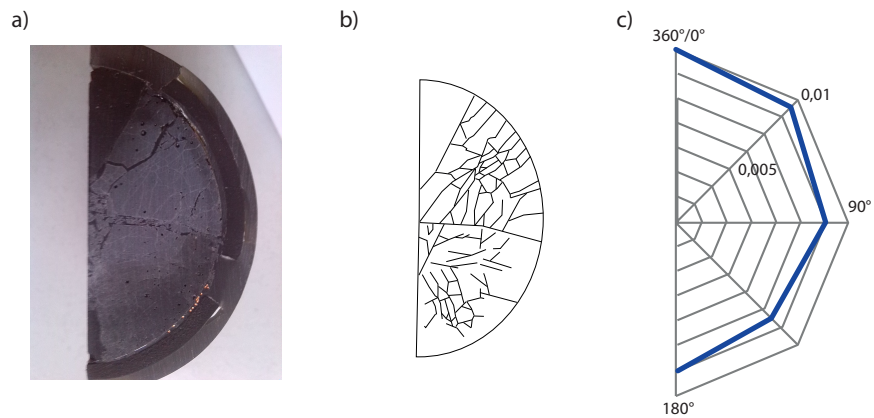


FIGURE 85 – Réseau de fissure horizontal de l'échantillon C21. a) Photographie du haut du cylindre. b) Réseau de fissure obtenu. c) Densité de fissure orientée.

On rappelle alors les valeurs de  $\rho_c$  obtenus par la microstructure et les écarts des valeurs issues des vitesses que nous avons pu trouver au cours de cette étude de microstructure.

Tableau 18 – **Récapitulatif de la densité de fissure,  $\rho_c$ , obtenue par microstructure et par mesure de vitesse.**

	par microstructure	par mesure des vitesses	écart
état initial	0,047	0,045	4%
réseau endommagé (C21)	0,26	0,33	27%
après rupture en fluage tertiaire	0,30	0,39	30%

On note que l'erreur entre la mesure obtenue par les vitesses à partir de l'approximation de non interaction et la détermination par microstructure augmente avec la densité de fissure. Pour  $\rho_c \simeq 0,3$  l'erreur est de 30% indiquant que la méthode issue de l'hypothèse NIA n'est plus appropriée.

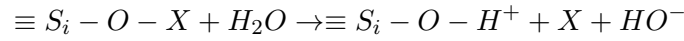
### c. Pendant l'expérience C22

L'expérience C22 a été un peu différente. En effet, une fois que la contrainte différentielle a été augmentée au premier palier, nous n'avons pas réalisé une série de palier. Nous avons simplement fait un palier long de 18 jours. Au cours de ce palier, le circuit de pore est ouvert. Deux échantillons de fluide de pore (de 2,0 mL) sont récupérés au tout début et un second à la fin du palier, après 18 jours. Le Tableau 20 rappelle en pourcentage la composition en éléments principaux du verre, ainsi que la composition en mg/L des deux échantillons de 2,0 mL d'eau pure prélevés. La première observation montre que dans le fluide de pore récupéré en fin de palier, des éléments du verre sont trouvés. Le taux de dissolution massique (en pourcentage) est obtenu connaissant la masse totale de l'échantillon (285 g). Pour le Bore, par exemple, on a trouvé 6,3 mg/L dans un échantillon de 2,0 mL, soit 0,013 mg de Bore. Dans le verre il y a 13% de Bore, soit 37,05 g. Le taux de dissolution massique est le rapport de ces deux quantités, soit  $3,4 \cdot 10^{-5}\%$ .

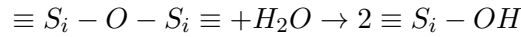
Tableau 19 – **Composition principale du verre et des deux échantillonnages d'eau pure.**

Élément	Verre initial	Échantillon 1	Échantillon 2	Taux de corrosion (%)
Si	43%	0,4 mg/L	3, mg/L	$4,2 \cdot 10^{-6}$
B	13%	<0,05 mg/L	6,3 mg/L	$3,4 \cdot 10^{-5}$
Na	9%	2,3 mg/L	15,0 mg/L	$9,9 \cdot 10^{-5}$
Li	2%	<0,05 mg/L	2,3 mg/L	$8,1 \cdot 10^{-5}$
Fe	3%	<0,05 mg/L	0,9 mg/L	$2,1 \cdot 10^{-5}$

On observe qu'en majorité, le Bore et les autres alcalins sont partis. Ensuite le Silicium est attaqué. Cette observation correspond bien aux réactions chimiques connues entre le verre et l'eau. En effet, il y a tout d'abord un premier mécanisme d'échange des cations (Na, Li) avec l'eau. Le Bore est aussi concerné à cause de l'affaiblissement des liaisons Si-O-B dû aux départs des alcalins [Oelkers, 2001; Ferrand et al., 2006; Criscenti et al., 2006] :



où  $X$  est un élément alcalin. Ce premier mécanisme explique l'augmentation de pH. Il crée une zone de verre appauvri en alcalin au contact de l'eau. Cette zone fragilise la structure du verre et entraîne la dissolution du Silicium [Oelkers, 2001; Ferrand et al., 2006; Criscenti et al., 2006] :



On retient de ces résultats de mesure de pH, d'observation de microstructure (bien qu'avec une grande incertitude) et de mesure de composition chimique, qu'il y a bien une corrosion chimique apportée par l'eau pure dans le verre. Cette corrosion est quantifiable, et peut être suivie au cours d'une expérience par les mesures de pH par exemple.

### 2.2.2 Comportement en présence d'une corrosion chimique

DANS le cas de l'expérience C21 (Figure 86a) les déformations volumiques augmente linéairement jusqu'au seuil D' (à  $Q=160$  MPa). Ensuite, elles augmentent palier après palier pour atteindre une dilatance cumulée de -1,1% après le dixième palier. La décharge de l'échantillon après les dix paliers montre une déformation irréversible de 0,8% montrant que les fissures se sont partiellement fermées.

Une comparaison des Figures 86a, 42a et 81a montre que la dilatance est plus importante dans le cas saturé en eau pure (86a) que dans le cas saturé en eau minérale (42a). Le cas sec (81a) est l'expérience où la dilatance atteinte est la plus faible.

Les mesures de vitesses (Figure 86b et c) montrent un comportement similaire à ce qui est observé pour l'expérience saturé en eau minérale (C7) : les vitesses sont constantes de  $Q=0$  jusqu'au début du premier palier de fluage. Dans cette partie on voit aussi une anisotropie anormale pour les ondes S. Ceci indique peut-être une saturation incomplète au début de l'expérience [Guéguen and Sarout, 2011]. Avec le début du fluage, les vitesses chutent. La différence entre les vitesses axiale et radiale des ondes P est de l'ordre de 1200 m/s comme pour l'expérience C7. À la fin, les ondes S n'indiquent plus d'anisotropie

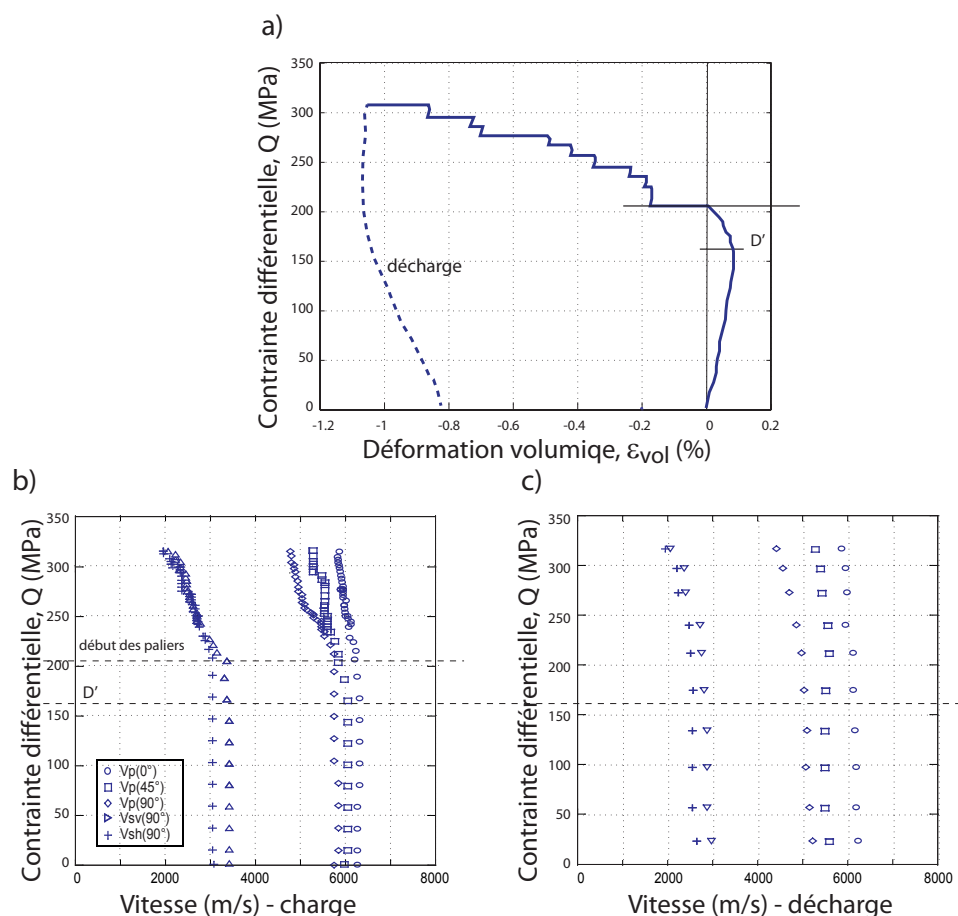


FIGURE 86 – **Comportement mécanique de l'expérience C21.** a) Déformation volumique en fonction du chargement. b) et c) Vitesses des ondes élastiques au cours du chargement puis du déchargement. Le début des paliers et le seuil  $D'$  observé sur la Figure a sont rappelés par des traits en pointillé sur les Figures b et c.

montrant que la saturation s'est complétée avec l'augmentation de l'endommagement.

Dans le cas de l'expérience C22, la Figure 87a représente le comportement des déformations volumiques et du taux d'EA, en fonction du temps, pendant le palier de corrosion sous contrainte de 18 jours. On observe que les déformations volumiques ne sont pas constantes. Il y a tout d'abord une décélération des déformations, suivie par une vitesse de déformation constante ( $\dot{\epsilon}_{vol} = 2,6 \cdot 10^{-8} \text{ s}^{-1}$ ). Pendant ce long palier, le taux d'EA n'est pas nul et on voit quelques sauts de déformations, corrélés à des pics d'EA, montrant leur activité.

Après ce palier, l'échantillon est déchargé et une déformation résiduelle est obtenue : la Figure 87b représente la déformation volumique en fonction de la contrainte différentielle pendant la charge, le palier et la décharge. Une déformation volumique résiduelle de 0,05% est obtenue.

Il n'est pas vraiment possible de comparer les résultats mécaniques obtenus pendant



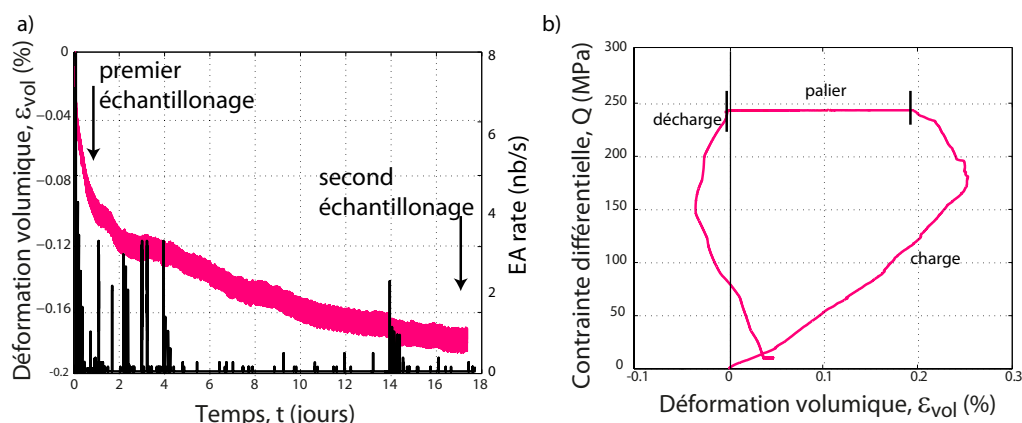


FIGURE 87 – **Déformation volumique pendant la corrosion sous contrainte.** Expérience C21. a) Déformation volumique et taux d’EA en fonction du temps pendant le palier. b) Évolution de la déformation volumique en fonction du chargement pendant la charge, le palier et la décharge.

cette dernière expérience aux autres expériences. Le temps n’étant pas du tout le même. Cependant cette expérience fut très utile pour la mesure de la composition du fluide de pore. Aussi, elle nous servira plus loin pour essayer de trouver un équivalent à la lixiviation industrielle, dans notre laboratoire.

## 2.3 Comparaison des effets mécanique et chimique

ON rappelle ici que l’effet mécanique est considéré comme étant l’effet de la présence d’un fluide de pore dans les fissures. L’effet chimique est dû à la présence d’un fluide réactif et donc d’une dissolution des particules du verre.

La comparaison des résultats de déformation des expériences C6 et C7 montre immédiatement que l’endommagement d’un échantillon est augmenté par la présence d’un fluide de pore. D’un point de vue mécanique, la présence d’un fluide de pore permet aux fissures de se propager à contrainte plus faible [Freiman, 1984; Michalske and Freiman, 1982; Meredith and Atkinson, 1985]. D’un point de vue chimique, la dissolution des particules augmente cet effet (comparaison de C7 et C21).

Il est possible de quantifier ces effets. Entre le cas sec, et le cas saturé en eau minérale, il y a une augmentation de déformation de 180%. Entre le cas saturé en eau minérale et le cas saturé en eau pure, il y a une augmentation des déformations de 140%. À notre échelle de temps en laboratoire, les effets mécaniques apportent une plus grande variation de dilatance que les effets chimiques avec un rapport de 1,3.

Ces influences mécanique et chimique sur l'endommagement ont été décrites aussi par les mesures de vitesses. Elles sont ici interprétées en termes de densité de fissure. La Figure 88 montre la densité de fissure verticale (a) et horizontale (b) pour ces trois expériences en fonction de la contrainte différentielle normalisée. On voit ici aussi l'endommagement plus important dans le cas de l'expérience saturé en fluide corrosif : la densité maximale de fissure verticale est de  $\alpha_1=0,25$  contre 0,23 dans le cas saturé en eau et 0,15 dans le cas sec. Les densités de fissure horizontales n'ont pas beaucoup évoluées et sont aux alentours de 0,05-0,06 à la fin de chaque expérience.

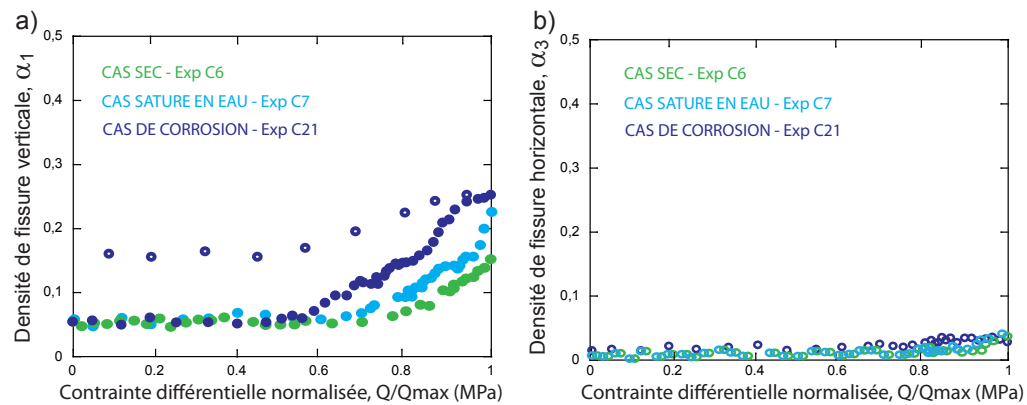


FIGURE 88 – Densités de fissure pour C6 C7 et C21 inversées depuis les mesures de vitesse. a) Densité de fissure verticale. b) Densité de fissure horizontale. Dans le cas de l'expérience C21, les mesures pendant la décharge sont représentées par des cercles discontinus.

## Expériences complémentaires

APRÈS analyse des précédents résultats, nous retenons, que la diminution de la tension de surface explique mécaniquement, l'augmentation de l'endommagement dans un échantillon saturé en eau minérale (comparé à un cas sec). D'un point de vue des effets chimiques, à part l'effet de rugosité supplémentaire vu sur l'échantillon C21 (mais qui est contestable) nous ne pouvons pas expliquer en quoi la dissolution chimique du verre fait augmenter son endommagement. C'est ce point que nous allons chercher à détailler ici.

Nous comparerons pour cela trois expériences de rupture classique sur trois échantillons préparés différemment. Le premier est un échantillon fissuré (expérience C4), le second est fissuré et lixivié industriellement au CEA (expérience C15). Le processus de lixiviation est réalisé à pression ambiante et à 90°C. Il s'agit d'une lixiviation dynamique : l'échantillon de verre fissuré est placé dans un bain de fluide corrosif (eau pure) pendant deux semaines avec un flux de renouvellement à 2,9 mL/min. Le troisième échantillon considéré a été fissuré puis corrodé. Il s'agit en fait de l'échantillon récupéré après l'expérience C22. L'expérience de rupture réalisé sur cet échantillon est notée C22\_2.

Tableau 20 – **Récapitulatif des tests de rupture réalisé sur des échantillons corrodés.**

Échantillon	Etat	$\sigma'_3$ (MPa)	$Q_{max}$ (MPa)	$E_0$ (GPa)
R7T7_C4	TT 300°C	10	335	66,5
R7T7_C15	TT 300°C + lixiviation	10	288	53,1
R7T7_C22_2	TT 300°C + exp C22	10	305	45,0

La Figure 89 représente le comportement des déformations des expériences C4, C15 et C22\_2. La Figure 89a est la représentation des déformations axiales en fonction de la contrainte axiale, tandis que la Figure 89b est la représentation des déformations volumiques en fonction de la contrainte différentielle.

Pour l'échantillon simplement fissuré (expérience C4), le comportement de la contrainte axiale reste linéaire jusqu'à la rupture qui arrive à  $\sigma_1=350$  MPa (ce qui correspond à  $Q=335$  MPa). Le module de Young statique est obtenu par la pente de ce graphique :  $E_0=66,5$  GPa. D'après les déformations volumiques, on mesure le seuil D' qui correspond au début de la dilatance à  $Q_{D'}=190$  MPa. Comme on l'a déjà vu, la dilatance n'est pas vraiment importante et ne devient jamais prédominante sur la compression.

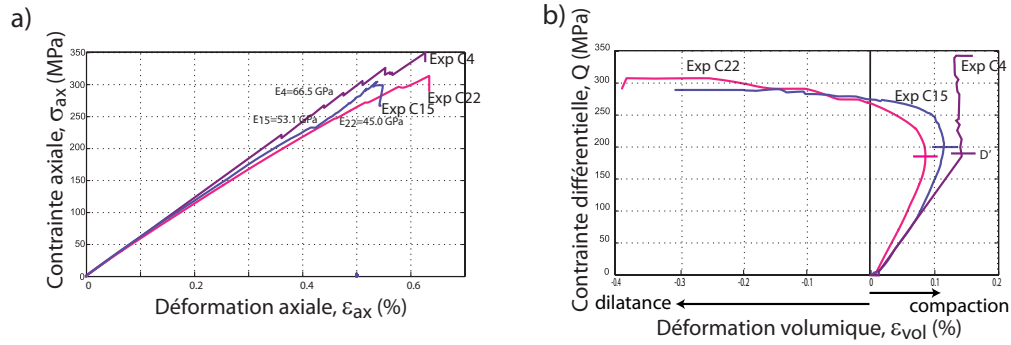


FIGURE 89 – **Comportement mécanique de C4, C15 et C22\_2.** a) Déformation axiale en fonction du chargement et module de Young. b) Déformation volumique en fonction de la contrainte différentielle.

Les expériences réalisées avec des échantillons corrodés présentent des comportements similaires et différents par rapport à l'expérience C4. D'un côté, le même comportement linéaire est observé pour les déformations axiales. La résistance mécanique est légèrement réduite mais reste dans la barre de dispersion statistique ( $Q=288$  MPa pour l'expérience C15 et 305 MPa pour l'expérience C22). La corrosion apporte un effet important sur l'endommagement et les paramètres élastiques du verre fissuré. On mesure une nette diminution du module de Young avec l'augmentation de la corrosion : C15 présente un module de Young de 53,1 GPa et C22, de 45,0 GPa. Le comportement en dilatance est aussi différent : dans les deux cas de la corrosion, la dilatance est bien plus importante et prédomine sur la compression. Cette observation est en bonne corrélation avec la diminution du module de Young. On note cependant que le seuil D' ne varie pas beaucoup (tout comme la résistance maximale) :  $Q_{D'}=190$  MPa pour l'expérience C4, 200 MPa pour l'expérience C15 et 185 MPa pour l'expérience C22.

Ces observations mettent en évidence l'effet de la corrosion qui augmente l'endommagement de l'échantillon par le biais d'une réduction de ses paramètres élastiques.

## Interprétation en terme de fissuration

### 4.1 Surface fissurée

LA densité de fissure peut être interprétée en terme de surface fissurée. On considère que la surface interne d'une fissure est  $2\pi a^2$ . C'est une hypothèse assez simplificatrice mais qui n'est pas aberrante. Ainsi la surface fissurée de tout l'échantillon est  $S_c = 2\pi a^2 N$ , où  $N$  représente le nombre de fissure. On sait que la densité de fissure globale est  $\rho_c = \alpha_1 + 2\alpha_3 = Na^3/V_T$ . On obtient alors,  $S_c = 2\pi\rho_c V_T/a$ . Connaissant la rayon moyenne des fissures (1,5 mm), on trouve une surface fissurée de 0,10 m<sup>2</sup> pour l'expérience C6, 0,13 m<sup>2</sup> pour l'expérience C7, et 0,16 m<sup>2</sup> pour l'expérience C21.

Cette valeur peut être comparée à la surface fissurée issue des mesures de composition chimique de l'eau. En effet, elles permettent de remonter à la surface vue par le fluide. On considère par exemple que le Bore est le traceur de la réaction chimique de corrosion. La vitesse de réaction est connue d'après Oelkers [2001]; Ferrand et al. [2006]; Criscenti et al. [2006] :  $V_r = 6.10^{-6}$  g/m<sup>2</sup>/jours (à température ambiante et pour un pH de 8).

On a trouvé 6,3 mg/L de Bore dans un échantillon de 2,0 mL. Ce qui correspond à  $12,6 \cdot 10^{-6}$  g de Bore relâché par le verre pendant les 18 jours entre les deux prélèvements. Soit  $7 \cdot 10^{-7}$  g/jours. On considère que la vitesse de réaction est constante au cours du temps. Ainsi, le rapport entre cette vitesse et la quantité de Bore relâchée est 0,12 m<sup>2</sup>. Cette surface représente la surface totale vue par le flux d'eau pure, soit la surface fissurée de l'échantillon. Cette surface est en très bon accord avec ce que la densité de fissure nous a indiqué pour les autres expériences.

La bonne corrélation entre ces deux mesures peut indiquer que la corrosion est homogène dans l'échantillon. En effet, la surface vue par le fluide corrosif est la même que la surface fissurée de tous les autres échantillons. Cette remarque met en doute l'interprétation que

nous avons fait à propos de l'observation des bords des fissures de l'échantillon C21 qui semblaient indiquer une corrosion inhomogène dans l'échantillon (Figure 83). Il se peut que ces observations n'étaient finalement pas représentatives de tout le réseau.

## 4.2 Perméabilité et densité de fissure

LA densité de fissure peut aussi être interprétée en terme de perméabilité. D'après Dienes [1982] et Gueguen and Dienes [1989] la perméabilité peut être décrite par :

$$k \propto f w^2 \alpha_1 \quad (84)$$

où  $w$  est l'ouverture des fissures et  $f$  représente le rapport des fissures connectées. Dans le cas de l'expérience C21, nous avons pu calculer la perméabilité en continue grâce au circuit de pore ouvert. Elle est corrigée de l'augmentation de déformation : Figure 90a. On observe que la perméabilité est très faible au tout début ( $3,9 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$ ). En augmentant la contrainte différentielle, on voit une augmentation de la perméabilité. À la contrainte finale de 310 MPa, la perméabilité est de  $1,5 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ . Son augmentation n'est pas régulière au cours de l'expérience. Pendant le premier, le huitième et le dixième palier on voit des sauts de perméabilités (mis en évidence par des flèches).

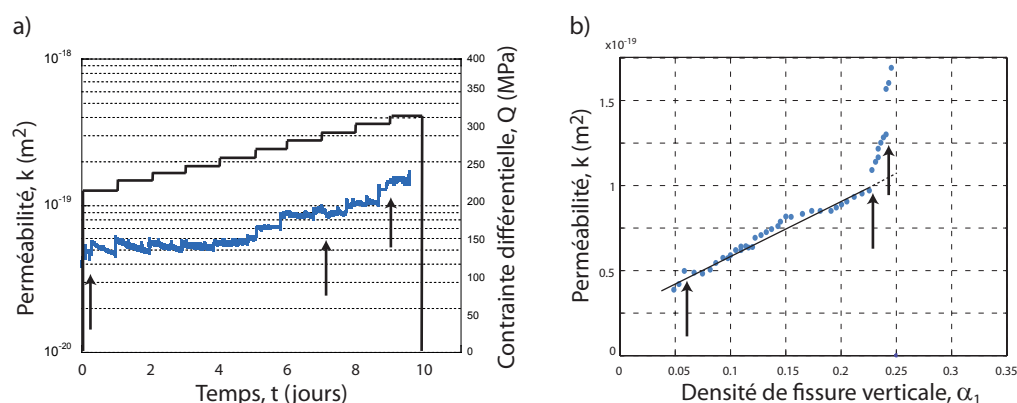


FIGURE 90 – **Perméabilité obtenue au cours de l'expérience C21.** a) Perméabilité et contrainte axiale au cours du temps. b) Perméabilité en fonction de la densité de fissure verticale issue de la Figure 88a.

En traçant la perméabilité en fonction de la densité de fissure verticale (Figure 90b) on voit au début une partie bien linéaire. Pendant cette partie, la perméabilité augmente à cause de l'augmentation de la densité de fissure. Au-delà de la densité de fissure de 0,22 (qui correspond au début du huitième palier), le comportement de la perméabilité n'est plus linéaire. D'après l'équation (84) cela signifie que  $f$  ou  $w$  varient.

On peut interpréter les sauts de perméabilité en terme de connexion de fissure (et donc de variation de  $f$ ), mais cette interprétation ne suffit pas pour retrouver la linéarité précédente. Celle-ci provient alors d'une augmentation supplémentaire de l'ouverture des fissures. En effet, si  $f$  et  $w$  avaient été constants, la perméabilité aurait atteint la valeur de  $1,2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$  (fin de la ligne en pointillé). Or on a une perméabilité de  $1,7 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ . Deux sauts de perméabilité apportent une augmentation de  $0,3 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ . Il reste donc encore une augmentation de perméabilité de  $0,2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$  qui provient de l'évolution de  $w$ . Ceci indique qu'il y a eu une augmentation supplémentaire de l'ouverture des fissures de 12%.

Cette remarque à propos d'une ouverture supplémentaire peut être expliquée par l'étude de Detwiler et al. [2003] qui décrit que l'endommagement apporté par une dissolution chimique apporte une augmentation de l'ouverture des fissures. Dans notre cas, la dissolution chimique du verre induit une ouverture plus importante des fissures. C'est un point supplémentaire qui peut expliquer l'effet chimique de la corrosion sur le comportement mécanique du verre.

LES expériences réalisées en condition de corrosion chimiques ont mis en évidence l'effet chimique de la dissolution du verre. L'eau pure à travers le verre se charge en élément (B, Li, Na, Si) augmentant ainsi son pH.

Cette corrosion a pour effet de diminuer les propriétés élastiques du verre et d'augmenter son endommagement. Cependant, on ne note pas d'effet sur la résistance mécanique globale de l'échantillon qui reste toujours très élevée. L'effet de corrosion n'est pas assez important, à notre échelle, pour avoir une influence importante sur le comportement général du verre à la rupture. On remarque que la corrosion réalisée en laboratoire peut être équivalente à une corrosion de lixiviation à échelle industrielle.

La comparaison d'expériences de fluage dans les cas sec, saturé en fluide non-réactif et en fluide corrosif montre que l'effet mécanique de la présence d'un fluide de pore accentue l'endommagement des échantillons et la propagation sous-critique des fissures. Les effets de la dissolution chimique accentuent ce phénomène. Cependant on voit qu'à notre échelle de temps, les effets chimiques sont moins importants que les effets mécaniques.

D'un point de vue théorique, il serait alors intéressant de réfléchir à inclure un paramètre dans la loi de propagation sous-critique des fissures, qui tiendrait compte de l'effet chimique. On sait que l'effet mécanique est décrit par  $\gamma$ . La corrosion influe sur la surface d'ouverture des fissures et sur la structure du verre aux bords des fissures. Ainsi, le paramètre de corrosion à ajouter au modèle, pourrait être représenté par un facteur réduisant la résistance des fissures (soit un coefficient multiplicateur à  $\gamma$ ).



## Septième partie

# Conclusion générale

CETTE thèse, qui s'inscrit dans l'étude des problématiques liées au stockage des déchets radioactifs, a eu pour objectif de décrire le comportement du verre fissuré en condition de compression. Le CEA a fourni les échantillons de verre inactif R7T7, sous la forme de barreaux, réalisés dans des conditions idéales de refroidissement lent évitant ainsi les contraintes résiduelles internes et la formation de fissures.

Les échantillons de verre ont ensuite été fissurés par un protocole contraint de choc thermique. L'ensemble de nos expériences nous a permis de quantifier le réseau de fissures introduit initialement, de suivre son comportement et son endommagement lors d'expériences longues et d'observer la rupture macroscopique des échantillons sous différentes conditions. L'étude théorique décrite au cours de ce manuscrit a été réalisée dans le but de comprendre le comportement mécanique des fissures soumises à des contraintes déviatoriques constantes au cours du temps. L'ensemble de cette thèse sur le comportement du verre fissuré sous pression, a contribué à apporter des données expérimentales nouvelles sur le comportement des fissures. En effet, le verre n'a été que peu étudié en compression, bien qu'il représente un matériau de référence pour l'étude des roches. Nous avons ainsi obtenu des informations originales sur les réseaux de fissures, leur évolution avec l'endommagement, et leur devenir lors de ruptures macroscopiques.

Dans l'étude de la microstructure du réseau de fissure introduit par choc thermique, nous retiendrons les principaux points suivants :

- ✧ Un choc thermique froid crée des contraintes de tension qui fissurent le bord des échantillons. Ces fissures se propagent jusqu'au cœur de l'échantillon créant ainsi un réseau plus ou moins homogène en fonction de la température du choc.
- ✧ Le paramètre d'endommagement bien connu en mécanique, la densité de fissure, peut être mesuré aisément dans le verre du fait de la facilité à y observer les fissures. Cette densité de fissure a pu être comparée à sa valeur déduite des mesures de vitesses des ondes élastiques. Ainsi la méthode théorique liée à l'approximation de non-interaction qui relie les vitesses à l'endommagement a été validée pour des faibles valeurs de densité de fissure.
- ✧ Le réseau initial introduit dans le verre présente une géométrie transverse isotrope, une répartition homogène et une densité de fissure connue pour un choc thermique à 300°C.

Nous retiendrons de l'étude du fluage du verre fissuré les résultats suivants :

- ☆ Le fluage secondaire (déformation lente à vitesse constante sous chargement constant) peut apparaître dans le verre.
- ☆ La rupture lors d'un test de fluage est un phénomène progressif qui résulte en une rupture localisée. Il s'agit d'une rupture en fluage tertiaire qui a été observée dans le verre fissuré.
- ☆ Une température plus élevée accentue la vitesse de déformation et réduit le temps à la rupture. La variation des déformations avec la température permet d'obtenir un paramètre important de cette étude : l'énergie d'activation pour la propagation des fissures (de 32 kJ.mol<sup>-1</sup>).
- ☆ Le fluage ne semble pas affecter la contrainte maximale atteinte par le verre. Ce matériau, qui présente une très grande résistance, n'en varie pas quelque soit son endommagement (à l'échelle des expériences de laboratoire).
- ☆ Une étude de microstructure sur un échantillon observé après sa rupture en fluage tertiaire, a mis en évidence le comportement des fissures : le fluage provient d'une propagation verticale sous-critique des fissures, qui entraîne ensuite des interactions entre fissures et une rupture macroscopique de l'échantillon.

Nous retiendrons de l'étude théorique, les outils, interprétations et mécanismes suivants :

- ★ Une loi de propagation sous-critique des fissures a été utilisée pour décrire le comportement des fissures. D'après celle-ci, les fissures peuvent être thermiquement activées.

La propagation peut également se faire, si les contraintes appliquées dépassent un certain seuil, influencé par le fluide de pore et la surface élémentaire de propagation des fissures.

- ★ Les contraintes sont d'ailleurs explicitées en terme de facteur d'intensité des contraintes. Celui-ci peut être décrit par un modèle de wing-crack. D'après ce modèle, la propagation des fissures est verticale et stable à contrainte faible. À contrainte plus élevée, des interactions entre fissures apparaissent entraînant la rupture localisée de l'échantillon.
- ★ Certaines hypothèses ont été considérées pour démontrer que le couplage de ces deux approches permet de comprendre et de prédire correctement le comportement en fluage secondaire, ainsi que de donner une écriture analytique du temps à la rupture qui est, lui aussi, bien en accord avec les données expérimentales.
- ★ Il est alors possible de conclure que le modèle théorique présenté ici comprend bien les processus clés de la propagation sous-critique des fissures.

**E**NFIN, en ce qui concerne la corrosion des verres, nous retiendrons les points suivants :

- ★ Une corrosion chimique est possible dans le verre à l'échelle du laboratoire. Cette dernière apporte une diminution des propriétés élastiques du verre et augmente son endommagement.
- ★ Cependant, cette corrosion n'affecte pas, à notre échelle de temps, la résistance maximale du verre fissuré.

**U**N rapprochement aux roches naturelles et aux problématiques des géosciences a été abordé dans ce manuscrit. Le modèle théorique validé sur les verres devrait pouvoir être appliqué aux roches. Nous avons montré que le verre semble avoir un comportement différent de celui des roches, dû à sa faible sensibilité à la contrainte. Cependant cette différence est explicable par le modèle : il s'agit d'une variation d'un paramètre lié à la structure du matériau (amorphe pour le verre ou cristalline pour les roches). La variation de ce paramètre explique la différence de sensibilité à la contrainte. Ainsi le modèle peut être utilisé pour les roches, à condition de prendre en compte leur structure cristalline.

Nous proposons une application du modèle au grès, dont la quasi-totalité des paramètres est connue d'après la littérature. Elle permet d'inverser des données expérimentales et d'obtenir l'énergie d'activation qui était alors inconnue. Le modèle pourrait maintenant servir à prédire les déformations lentes et le temps à la rupture en fluage tertiaire de ce matériau pour des expériences à venir.

C CONCERNANT le scénario de stockage géologique des déchets HAVL, voici les avancées réalisées. L'étude expérimentale sur des échantillons à taille réduite de verre inactif a mis en évidence les processus qui introduisent des fissures. Nous avons ainsi montré qu'un choc thermique (équivalent à un refroidissement brutal de colis) peut fissurer le bord des cylindres. Si le gradient de température est assez important, la fissuration peut se propager jusqu'au cœur du verre. À l'échelle réduite de nos petits échantillons nous avons montré qu'en dessous d'un choc à 300°C le cœur du verre peut rester intact. Les effets d'échelle liés à la taille des échantillons n'ont pas été étudiés. Le second point de notre étude a pu montrer que si le verre est fissuré, des conditions de stockage hydrostatique referment les fissures. Mais, celles-ci ne sont pas pour autant cicatrisées. Elles peuvent alors se propager et produire une fissuration supplémentaire du verre, si le paramètre temps est pris en compte, avec une variation de température et la présence d'un fluide. Ces expériences ont été réalisées dans des conditions extrêmes de pression déviatorique qui ne sont pas, heureusement, celles présentes en réalité lors du stockage. Ces expériences nous permettent tout de même de comprendre le comportement du verre et de valider un modèle permettant de prédire les déformations au cours du temps. Il est alors possible de l'extrapoler à un colis de verre en tenant compte de la géométrie différente des fissures ainsi que de l'ensemble des pressions mises en œuvre. Un dernier point abordé montre qu'une corrosion est possible. Ce point n'a pas à ce jour été suffisamment développé pour aboutir à une conclusion forte sur l'extrapolation au stockage. Cependant elle peut montrer que de telles expériences sont réalisables et peuvent être poursuivies sur le verre, en condition simple de laboratoire.

### Suggestions de perspectives de travail

LES perspectives de travail sont multiples et peuvent être rassemblées en trois domaines.

1. Du point de vue de la mécanique de la fracture : il serait intéressant de développer les observations de fissures. Il est important de considérer la chance que nous avons de travailler sur un matériau aussi parfait pour ce type d'observation. Il serait dommage d'en rester là. Une étude intéressante serait alors de décrire le réseau de fissures en trois dimensions. Pour cela, des images de la microstructure pourraient être réalisées dans le plan radial avec des coupes bien plus nombreuses à différentes hauteurs. Ainsi le réseau en trois dimensions pourrait être obtenu. L'idéal serait d'apporter une contribution aux modèles de description des fissures tels que le modèle de "wing-crack" utilisé dans cette étude. La description des formes de fissures et de leur rugosité pourrait également apporter une grande contribution à la compréhension de la mécanique de la fracture.
2. Du point de vue des géosciences : il faudrait approfondir l'application du modèle de propagation sous-critique des fissures aux roches. Ceci afin de permettre de déterminer des paramètres manquants sur certains matériaux, comme l'énergie d'activation. Ce paramètre est souvent mal connu ou assez imprécis. Pourtant il est très utile pour décrire des phénomènes de fluage dans la croûte notamment. Pour ce faire, il faudrait d'abord essayer de déterminer si il doit y avoir des coefficients de correction entre le verre et les roches en utilisant davantage les données expérimentales bien connues sur les roches. En résumé, nous avons expliqué le phénomène de fluage fragile par propagation sous-critique dans le verre, il faut à présent l'adapter aux matériaux plus complexes.
3. Du point de vue du stockage des déchets radioactifs : le premier point à aborder serait de développer l'observation de la corrosion sous contrainte (expériences longues, mesure de perméabilité, mesure de composition de fluide, observation de microstructure). L'objectif serait de développer la compréhension des effets chimiques qui accentuent les mécanismes de déformation afin de les prédire. Un autre point à étudier est l'effet inverse. En corrosion, on propage davantage les fissures, mais il existe dans le verre le principe de cicatrisation avec des températures plus élevées. Ce phénomène, très important pour le stockage des verres, représente un grand intérêt.



*E*<sub>N</sub> référence à la citation d'Alexandra David Neel de ce début de manuscrit, je propose un post-scriptum. Cette thèse ne permet pas de tirer une conclusion forte sur la sureté ou la dangerosité du stockage des verres en profondeur. Cependant, des avancées intéressantes ont été faites, des mécanismes ont été compris et des données nouvelles ont été obtenues. Une étape du chemin a été parcourue. L'horizon n'est pourtant pas atteint, mais il faut garder à l'esprit que la route suivie a, à elle seule, tout son intérêt.





## Bibliographie

- Adams, R. and McMillan, P. (1977). Static fatigue in glass. *Journal of Materials Science*, 12(4) :643–657.
- Adelinet, M., Dorbath, C., Le Ravalec, M., Fortin, J., and Guéguen, Y. (2011). Deriving microstructure and fluid state within the icelandic crust from the inversion of tomography data. *Geophysical Research Letters*, 38(3).
- Anderson, O. and Grew, P. (1977). Stress corrosion theory of crack propagation with applications to geophysics. *Reviews of Geophysics*, 15(1) :77–104.
- Anderson, T. (1995). Fracture mechanics. *CRC Process, London*.
- Angeli, F. (2000). *Structure et réactivité aqueuse des verres silicatés Apport de la résonance magnétique nucléaire haute-résolution*. PhD thesis.
- Argon, A. (1959a). Distribution of cracks on glass surfaces. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 250(1263) :482–492.
- Argon, A. (1959b). Surface cracks on glass. *Proceedings of the Royal Society of London. Series A. Mathematical and Physical Sciences*, 250(1263) :472–481.
- Ashby, M. and Sammis, C. (1990). The damage mechanics of brittle solids in compression. *Pure and Applied Geophysics*, 133(3) :489–521.
- Ashby, M. F. and Hallam, S. (1986). The failure of brittle solids containing small cracks under compressive stress states. *Acta Metallurgica*, 34(3) :497–510.
- Atkinson, B. (1984). Subcritical crack growth in geological materials. *Journal of Geophysical Research*, 89(B6) :4077–4114.

- Atkinson, B. K. (1982). Subcritical crack propagation in rocks : theory, experimental results and applications. *Journal of Structural Geology*, 4(1) :41–56.
- Atkinson, B. K. and Meredith, P. G. (1987). The theory of subcritical crack growth with applications to minerals and rocks. *Fracture mechanics of rock*, 2 :111–166.
- Bahat, D. (1991). *Tectono-fracturography*. Springer-Verlag.
- Baker, T. and Preston, F. (1946). Fatigue of glass under static loads. *Journal of Applied Physics*, 17(3) :170–178.
- Barenblatt, G. I. (1962). The mathematical theory of equilibrium cracks in brittle fracture. *Advances in applied mechanics*, 7(1) :55–129.
- Barth, N., George, D., Ahzi, S., Rémond, Y., Joulaee, N., Khaleel, M., and Bouyer, F. (2013). Simulation of cooling and solidification of three-dimensional bulk borosilicate glass : effect of structural relaxations. *Mechanics of Time-Dependent Materials*, pages doi :10.1007/s11043-013-9213-3.
- Baud, P. and Meredith, P. (1997). Damage accumulation during triaxial creep of darley dale sandstone from pore volumetry and acoustic emission. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 34(3) :24–e1.
- Benson, P., Schubnel, A., Vinciguerra, S., Trovato, C., Meredith, P., and Young, R. P. (2006). Modeling the permeability evolution of microcracked rocks from elastic wave velocity inversion at elevated isostatic pressure. *J. geophys. Res*, 111 :B04202.
- Bhat, H., Rosakis, A., and Sammis, C. (2012). A micromechanics based constitutive model for brittle failure at high strain rates. *Journal of Applied Mechanics*, 79(3) :1–12.
- Bhat, H., Sammis, C., and Rosakis, A. (2011). The micromechanics of westerley granite at large compressive loads. *Pure and Applied Geophysics*, 168(12) :2184–2198.
- Birch, F. (1960). The velocity of compressional waves in rocks to 10 kilobars, part 1. *Journal of Applied Mechanics*, 65 :1083–1102.
- Brace, W., Walsh, J., and Frangos, W. (1968). Permeability of granite under high pressure. *Journal of Geophysical Research*, 73(6) :2225–2236.
- Brantut, N., Baud, P., Heap, M., and Meredith, P. (2012). Micromechanics of brittle creep in rocks. *Journal of Geophysical Research*, 117(B8) :doi :10.1029/2012JB009299.
- Brantut, N., Heap, M., Meredith, P., and Baud, P. (2013). Time-dependent cracking and brittle creep in crustal rocks : A review. *J. Struct. Geol.*, 52 :doi :10.1016/j.jsg.2013.03.007.

- Brantut, N., Schubnel, A., and Guéguen, Y. (2011). Damage and rupture dynamics at the brittle-ductile transition; the case of gypsum. *Journal of Geophysical Research*, 116(B01404) :doi :10.1029/2010JB007675.
- Brechet, Y. and Neda, Z. (1995). On the structure of thermal cracks in glass. *EPL (Europhysics Letters)*, 32(6) :475.
- Bristow, J. (1960). Microcracks, and the static and dynamic elastic constants of annealed and heavily cold-worked metals. *British Journal of Applied Physics*, 11, no 2 :p. 81.
- Budiansky, B. and O’Connell, R. (1976). Elastic moduli of a cracked solid. *International Journal of Solids and Structures*, 12(2) :81–97.
- Charles, R. (1958). Static fatigue of glass. i. *Journal of Applied Physics*, 29(11) :1549–1553.
- Chave, T., Frugier, P., Ayral, A., and Gin, S. (2007). Solid state diffusion during nuclear glass residual alteration in solution. *Journal of nuclear materials*, 362(2) :466–473.
- Chelidze, T. (1993). Fractal damage mechanics of geomaterials. *Terra Nova*, 5(5) :421–437.
- Ciliberto, S., Guarino, A., and Scorretti, R. (2001). The effect of disorder on the fracture nucleation process. *Physica D : Nonlinear Phenomena*, 158(1) :83–104.
- Clark, V., Tittmann, B., and Spencer, T. (1980). Effect of volatiles on attenuation ( $q$ -1) and velocity in sedimentary rocks. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 85(B10) :5190–5198.
- Cormier, L., Ghaleb, D., Delaye, J.-M., and Calas, G. (2000). Competition for charge compensation in borosilicate glasses : Wide-angle x-ray scattering and molecular dynamics calculations. *Physical Review B*, 61(21) :14495.
- Cornelius, R. and Scott, P. (1993). A materials failure relation of accelerating creep as empirical description of damage accumulation. *Rock mechanics and rock engineering*, 26(3) :233–252.
- Criscenti, L. J., Kubicki, J. D., and Brantley, S. L. (2006). Silicate glass and mineral dissolution : calculated reaction paths and activation energies for hydrolysis of a q3 si by h3o+ using ab initio methods. *The Journal of Physical Chemistry A*, 110(1) :198–206.
- Darot, M. and Gueguen, Y. (1986). Slow crack growth in minerals and rocks : Theory and experiments. *Pure and Applied Geophysics*, 124(4) :677–692.
- Deruelle, O., Spalla, O., Barboux, P., and Lambard, J. (2000). Growth and ripening of porous layers in water altered glasses. *Journal of non-crystalline solids*, 261(1) :237–251.

- Deshpande, V. and Evans, A. (2008). Inelastic deformation and energy dissipation in ceramics : A mechanism-based constitutive model. *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 56 :doi :10.1016/j.jmps.2008.05.002.
- Detwiler, R. L., Glass, R. J., and Bourcier, W. L. (2003). Experimental observations of fracture dissolution : The role of pecllet number on evolving aperture variability. *Geophysical research letters*, 30(12).
- Dewers, T. and Hajash, A. (1995). Rate laws for water-assisted compaction and stress-induced water-rock interaction in sandstones. *Journal of Geophysical Research*, 100(B7) :13093–13112.
- Dienes, J. K. (1982). Permeability, percolation and statistical crack mechanics. In *Proceedings of the 23rd Symposium on Rock Mechanics, Issues in Rock Mechanics, University of California, Berkeley, California, August 25-27, 1982*.
- Divoux, T., Gayvallet, H., and Géminard, J.-C. (2008). Creep motion of a granular pile induced by thermal cycling. *Physical review letters*, 101(14) :148303.
- Doquet, V., Ben Ali, N., Constantinescu, A., and Boutillon, X. (2012). Fracture of a borosilicate glass under triaxial tension. *Mechanics of Materials*.
- Dubé, M., Doquet, V., Constantinescu, A., George, D., Rémond, Y., and Ahzi, S. (2010). Modeling of thermal shock-induced damage in a borosilicate glass. *Mechanics of Materials*, 42(9) :863–872.
- Ferrand, K., Abdelouas, A., and Grambow, B. (2006). Water diffusion in the simulated french nuclear waste glass son 68 contacting silica rich solutions : Experimental and modeling. *Journal of nuclear materials*, 355(1) :54–67.
- Fortin, J., Guéguen, Y., and Schubnel, A. (2007). Effects of pore collapse and grain crushing on ultrasonic velocities and  $v_p/v_s$ . *Journal of geophysical research*, 112 :doi :10.1029/2005JB004005.
- Fortin, J., Stanchits, S., Dresen, G., and Guéguen, Y. (2006). Acoustic emission and velocities associated with the formation of compaction bands in sandstone. *Journal of Geophysical Research*, 111(B10) :doi :10.1029/2005JB003854.
- Fortin, J., Stanchits, S., Dresen, G., and Gueguen, Y. (2009). Acoustic emissions monitoring during inelastic deformation of porous sandstone : comparison of three modes of deformation. *Pure and Applied Geophysics*, pages doi :10.1007/s00024-009-0479-0.

- Fortin, J., Stanchits, S., Vinciguerra, S., and Guéguen, Y. (2011). Influence of thermal and mechanical cracks on permeability and elastic wave velocities in a basalt from mt. etna volcano subjected to elevated pressure. *Tectonophysics*, 503(1) :60–74.
- Freiman, S. (1984). Effects of chemical environments on slow crack growth in glasses and ceramics. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 89(B6) :4072–4076.
- Fujii, Y., Kiyama, T., Ishijima, Y., and Kodama, J. (1999). Circumferential strain behavior during creep tests of brittle rocks. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 36(3) :323–337.
- Gehrke, E., Ullner, C., and Hähner, M. (1991). Fatigue limit and crack arrest in alkali-containing silicate glasses. *Journal of materials science*, 26(20) :5445–5455.
- Grechka, V. and Kachanov, M. (2006a). Effective elasticity of fractured rocks : A snapshot of the work in progress. *Geophysics*, 71(6) :W45–W58.
- Grechka, V. and Kachanov, M. (2006b). Effective elasticity of rocks with closely spaced and intersecting cracks. *Geophysics*, 71(3) :D85–D91.
- Griffith, A. (1921). The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical transactions of the royal society of london. Series A, containing papers of a mathematical or physical character*, 221 :163–198.
- Gueguen, Y. and Dienes, J. (1989). Transport properties of rocks from statistics and percolation. *Mathematical geology*, 21(1) :1–13.
- Guéguen, Y. and Fortin, J. (2013). Elastic envelopes of porous sandstones. *Geophysical Research Letters*, 40(14) :doi :10.1002/grl.50676.
- Guéguen, Y. and Kachanov, M. (2011). Effective elastic properties of cracked rocks - an overview, in, mechanics of crustal rocks. *CISM Courses and Lectures*, Volume 533 :73–125.
- Guéguen, Y., Reuschle, T., and Darot, M. (1990). Single-crack behaviour and crack statistics, in, deformation processes in minerals, ceramics and rocks. *Unwin Hyman, edited by DJ. Barber and PG Meredith*, pages 48–71.
- Guéguen, Y. and Sarout, J. (2011). Characteristics of anisotropy and dispersion in cracked medium. *Tectonophysics*, 503(1) :165–172.
- Heap, M., Baud, P., and Meredith, P. (2009a). Influence of temperature on brittle creep in sandstones. *Geophysical Research Letters*, 36(19) :doi :10.1029/2009GL039373.

- Heap, M., Baud, P., Meredith, P., Bell, A., and Main, I. (2009b). Time-dependent brittle creep in darley dale sandstone. *Journal of Geophysical Research*, 114(B7) :doi :10.1029/2008JB006212.
- Heap, M., Baud, P., Meredith, P., Vinciguerra, S., Bell, A., Main, I., et al. (2011). Brittle creep in basalt and its application to time-dependent volcano deformation. *Earth and Planetary Science Letters*, 307(1-2) :71–82.
- Hornby, B. (1998). Experimental laboratory determination of the dynamic elastic properties of wet, drained shales. *Journal of geophysical research*, 103(B12) :29945–29.
- Johnson, H. H. and Paris, P. C. (1968). Sub-critical flaw growth. *Engineering Fracture Mechanics*, 1(1) :3–45.
- Jorand, C., Chemenda, A., and Petit, J.-P. (2012). Formation of parallel joint sets and shear band/fracture networks in physical models. *Tectonophysics*, 581 :84–92.
- Kachanov, M. (1980). Continuum model of medium with cracks. *Journal of the engineering mechanics division*, 106 :1039–1051.
- Kachanov, M. (1993). Elastic solids with many cracks and related problems. *Advances in applied mechanics*, 30 :259–445.
- Kachanov, M. L. (1982). A microcrack model of rock inelasticity part ii : propagation of microcracks. *Mechanics of Materials*, 1(1) :29–41.
- Kachanov, M. L. (1992). Effective elastic properties of cracked solids. *Appl Mech Rev*, 45(8).
- Kranz, R., Frankel, A., Engelder, T., and Scholz, C. (1979). The permeability of whole and jointed barre granite. In *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, volume 16, pages 225–234. Elsevier.
- Kranz, R. L. (1980). The effects of confining pressure and stress difference on static fatigue of granite. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 85(B4) :1854–1866.
- Lawn, B. (1975). An atomistic model of kinetic crack growth in brittle solids. *Journal of Materials Science*, 10(3) :469–480.
- Lawn, B. and Wilshaw, R. (1975). *Fracture of brittle solids*. Cambridge university press.
- Liao, J., Hu, T., and Chang, C. (1997). Determination of dynamic elastic constants of transversely isotropic rocks using a single cylindrical specimen. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 34(7) :1045–1054.

- Lo, T., Coyner, K., and Toksoz, M. (1986). Experimental determination of elastic anisotropy of berea sandstone, chicopee shale, and chelmsford granite. *Geophysics*, 51(1) :164.
- Lockner, D. (1993). Room temperature creep in saturated granite. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 98(B1) :475–487.
- Lockner, D. and Byerlee, J. (1977). Acoustic emission and creep in rock at high confining pressure and differential stress. *Bulletin of the Seismological Society of America*, 67(2) :247–258.
- Lockner, D. A. (1998). A generalized law for brittle deformation of westerly granite. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 103(B3) :5107–5123.
- Louis, L., David, C., Špaček, P., Wong, T., Fortin, J., and Song, S. (2012). Elastic anisotropy of core samples from the taiwan chelungpu fault drilling project (tcdp) : direct 3-d measurements and weak anisotropy approximations. *Geophysical Journal International*.
- Lu, Z., Nomura, K., Sharma, A., Wang, W., Zhang, C., Nakano, A., Kalia, R., Vashishta, P., Bouchaud, E., and Rountree, C. (2005). Dynamics of wing cracks and nanoscale damage in glass. *Physical review letters*, 95(13) :135501.
- MacQuarrie, K. T. and Mayer, K. U. (2005). Reactive transport modeling in fractured rock : A state-of-the-science review. *Earth-Science Reviews*, 72(3) :189–227.
- Main, I., Sammonds, P., and Meredith, P. (1993). Application of a modified griffith criterion to the evolution of fractal damage during compressional rock failure. *Geophysical Journal International*, 115(2) :367–380.
- Mavko, G., Mukerji, T., and Dvorkin, J. (2003). *The rock physics handbook : tools for seismic analysis of porous media*. Cambridge Univ Pr.
- Mear, M. E., Sevostianov, I., and Kachanov, M. (2007). Elastic compliances of non-flat cracks. *International Journal of Solids and Structures*, 44(20) :6412–6427.
- Meredith, P. and Atkinson, B. (1983). Stress corrosion and acoustic emission during tensile crack propagation in whin sill dolerite and other basic rocks. *Geophysical Journal International*, 75(1) :1–21.
- Meredith, P. and Atkinson, B. (1985). Fracture toughness and subcritical crack growth during high-temperature tensile deformation of westerly granite and black gabbro. *Physics of the earth and planetary interiors*, 39(1) :33–51.
- Meredith, P. G. (1990). Fracture and failure of brittle polycrystals : an overview. In *Deformation Processes in Minerals, Ceramics and Rocks*, pages 5–47. Springer.

- Michalske, T. A. and Bunker, B. C. (1987). Steric effects in stress corrosion fracture of glass. *Journal of the American Ceramic Society*, 70(10) :780–784.
- Michalske, T. A. and Freiman, S. W. (1982). A molecular interpretation of stress corrosion in silica. *Nature*, 295 :511–512.
- Milsch, H. and Priegnitz, M. (2012). Evolution of microstructure and elastic wave velocities in dehydrated gypsum samples. *Geophysical Research Letters*, 39(24).
- Milsch, H., Priegnitz, M., and Blöcher, G. (2011). Permeability of gypsum samples dehydrated in air. *Geophysical Research Letters*, 38(18).
- Mould, R. and Southwick, R. (1959). Strength and static fatigue of abraded glass under controlled ambient conditions : I, general concepts and apparatus. *Journal of the American Ceramic Society*, 42(11) :542–547.
- Nara, Y., Takada, M., Mori, D., Owada, H., Yoneda, T., and Kaneko, K. (2010). Subcritical crack growth and long-term strength in rock and cementitious material. *International Journal of Fracture*, 164(1) :57–71.
- Nasseri, M., Schubnel, A., Benson, P., and Young, R. (2009). Common evolution of mechanical and transport properties in thermally cracked westerly granite at elevated hydrostatic pressure. *Rock Physics and Natural Hazards*, 166(5-7) :927–948.
- Nye, J. F. (1985). *Physical properties of crystals : their representation by tensors and matrices*. Oxford University Press, USA.
- Oelkers, E. H. (2001). General kinetic description of multioxide silicate mineral and glass dissolution. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 65(21) :3703–3719.
- Ojala, I. O., Main, I. G., and Ngwenya, B. T. (2004). Strain rate and temperature dependence of omori law scaling constants of ae data : Implications for earthquake foreshock-aftershock sequences. *Geophysical research letters*, 31(24) :doi :10.1029/2004GL020781.
- Ojala, I. O., Ngwenya, B. T., Main, I. G., and Elphick, S. C. (2003). Correlation of microseismic and chemical properties of brittle deformation in locharbriggs sandstone. *Journal of geophysical research*, 108 :doi :10.1029/2002JB002277.
- Orowan, E. (1944). The fatigue of glass under stress. *Nature*, 154(3906) :341–343.
- Ougier-Simonin, A. (2010). *Propriétés mécaniques et de transport des verres fissurés*. PhD thesis.



- Ougier-Simonin, A., Fortin, J., Guéguen, Y., Schubnel, A., and Bouyer, F. (2010). Cracks in glass under triaxial conditions. *International Journal of Engineering Science*, 49 :105–121.
- Ougier-Simonin, A., Guéguen, Y., Fortin, J., Schubnel, A., and Bouyer, F. (2011). Permeability and elastic properties of cracked glass under pressure. *Journal of geophysical research*, 116 :doi :10.1029/2010JB008077.
- Paterson, M. S. and Wong, T.-F. (2005). *Experimental rock deformation-the brittle field*. Springer Verlag.
- Philippou, J. (2001a). Verres, aspect théoriques. *Techniques de l'ingénieur*, AF 3600 :1–15.
- Philippou, J. (2001b). Verres, propriétés et applications. *Techniques de l'ingénieur*, AF 3601 :1–19.
- Pons, A. and Leroy, Y. (2012). Stability of accretionary wedges based on the maximum strength theorem for fluid-saturated porous media. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 60(4) :643–664.
- Pratt, H., Swolfs, H., Brace, W., Black, A., and Handin, J. (1977). Elastic and transport properties of an *in situ* jointed granite. In *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, volume 14, pages 35–45. Elsevier.
- Rebiscoul, D., Rieutord, F., Né, F., Frugier, P., Cubitt, R., and Gin, S. (2007). Water penetration mechanisms in nuclear glasses by x-ray and neutron reflectometry. *Journal of non-crystalline solids*, 353(22) :2221–2230.
- Reuschlé, T. (1989). *Les fluides et l'évolution des propriétés mécaniques des roches*. PhD thesis.
- Rice, J. and Rosengren, G. (1968). Plane strain deformation near a crack tip in a power-law hardening material. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 16(1) :1–12.
- Rudnicki, J. W. and Rice, J. (1975). Conditions for the localization of deformation in pressure-sensitive dilatant materials. *Journal of the Mechanics and Physics of Solids*, 23(6) :371–394.
- Sakaue, K., Yoneyama, S., and Takashi, M. (2009). Study on crack propagation behavior in a quenched glass plate. *Engineering Fracture Mechanics*, 76(13) :2011–2024.
- Sarout, J. and Gueguen, Y. (2008). Anisotropy of elastic wave velocities in deformed shales : Part 1–experimental results. *Geophysics*, 73(5) :D75.

- Savalli, L. and Engelder, T. (2005). Mechanisms controlling rupture shape during subcritical growth of joints in layered rocks. *Geological Society of America Bulletin*, 117(3-4) :436–449.
- Sayers, C. (1999). Stress-dependent seismic anisotropy of shales. *Geophysics*, 64 :93.
- Sayers, C. and Kachanov, M. (1995). Microcrack-induced elastic wave anisotropy of brittle rocks. *Journal of Geophysical Research*, 100(B3) :4149–4156.
- Schepers, A. and Milsch, H. (2013). Relationships between fluid-rock interactions and the electrical conductivity of sandstones. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth*, 118(7) :3304–3317.
- Schoenberg, M. (1980). Elastic wave behavior across linear slip interfaces. *The Journal of the Acoustical Society of America*, 68 :1516–1521.
- Schubnel, A., Jones, G., Thompson, B., Fortin, J., Guéguen, Y., and Young, R. (2007). Fluid-induced rupture experiment on fontainebleau sandstone : Premonitory activity, rupture propagation, and aftershocks. *Geophysical Research Letters*, 34 :doi :10.1029/2007GL031076.
- Schubnel, A., Walker, E., Thompson, B., Fortin, J., Guéguen, Y., and Young, R. (2006). Transient creep, aseismic damage and slow failure in carrara marble 3 deformed across the brittle-ductile transition. *Geophysical Research Letters*, 33 :doi :10.1029/2006GL026619.
- Sun, X. and Khaleel, M. (2004). Modeling of glass fracture damage using continuum damage mechanics - static spherical indentation. *International Journal of Damage Mechanics*, 13(3) :263–285.
- Swanson, P. L. (1984). Subcritical crack growth and other time-and environment-dependent behavior in crustal rocks. *Journal of Geophysical Research : Solid Earth (1978–2012)*, 89(B6) :4137–4152.
- Techer, I., Advocat, T., Lancelot, J., and Liotard, J.-M. (2001). Dissolution kinetics of basaltic glasses : control by solution chemistry and protective effect of the alteration film. *Chemical Geology*, 176(1) :235–263.
- Thompson, B., Young, R., and Lockner, D. (2005). Observations of premonitory acoustic emission and slip nucleation during a stick slip experiment in smooth faulted westerly granite. *Geophysical research letters*, 32 :doi :10.1029/2005GL022750.

- Thompson, B., Young, R., and Lockner, D. (2006). Fracture in westerly granite under ae feedback and constant strain rate loading : nucleation, quasi-static propagation, and the transition to unstable fracture propagation. *Pure and Applied Geophysics*, 163 :995–1019.
- Thomsen, L. (1986). Weak elastic anisotropy. *Geophysics*, 51(10) :1954–1966.
- Vanel, L., Ciliberto, S., Cortet, P., and Santucci, S. (2009). Time-dependent rupture and slow crack growth : elastic and viscoplastic dynamics. *Journal of Physics D : Applied Physics*, 42(21) :doi :10.1088/0022-3727/42/21/214007.
- Verney-Carron, A., Gin, S., and Libourel, G. (2008). A fractured roman glass block altered for 1800 years in seawater : Analogy with nuclear waste glass in a deep geological repository. *Geochimica et Cosmochimica Acta*, 72(22) :5372–5385.
- Vinciguerra, S., Trovato, C., Meredith, P., and Benson, P. (2005). Relating seismic velocities, thermal cracking and permeability in mt. etna and iceland basalts. *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences*, 42(7) :900–910.
- Walsh, J. (1965a). The effect of cracks in rocks on poisson’s ratio. *Journal of Geophysical Research*, 70(20) :5249–5257.
- Walsh, J. (1965b). The effect of cracks on the uniaxial elastic compression of rocks. *Journal of Geophysical Research*, 70(2) :399–411.
- Wang, X., Schubnel, A., J, F., Y, G., and G, H.-K. (2013). Physical properties and brittle strength of thermally cracked granite under confinement. *Journal of Geophysical Research*, 118 :doi :10.1002/2013JB010340.
- Waza, T., Kurita, K., and Mizutani, H. (1980). The effect of water on the subcritical crack growth in silicate rocks. *Tectonophysics*, 67(1) :25–34.
- Wiederhorn, S. (1966). Effects of environment on the fracture of glass. *Gordon and Breach, New York*.
- Wiederhorn, S. and Bolz, L. (1970). Stress corrosion and static fatigue of glass. *Journal of the American Ceramic Society*, 53(10) :543–548.
- Wu, F. T. and Thomsen, L. (1975). Microfracturing and deformation of westerly granite under creep condition. In *International Journal of Rock Mechanics and Mining Sciences & Geomechanics Abstracts*, volume 12, pages 167–173. Elsevier.
- Yang, S. and Jiang, Y. (2010). Triaxial mechanical creep behavior of sandstone. *Mining Science and Technology (China)*, 20(3) :339–349.

- Yin, H. (1992). *Acoustic velocity and attenuation of rocks : isotropy, intrinsic anisotropy, and stress-induced anisotropy*. PhD thesis.
- Zang, A., Wagner, C., and Dresen, G. (1996). Acoustic emission, microstructure, and damage model of dry and wet sandstone stressed to failure. *Journal of geophysical research*, 101(B8) :17507–17.

## Annexe A : récapitulatif des tests réalisés

Tableau 21 – Récapitulatif des tests réalisés par ordre chronologique

Échantillon	Date	État de l'échantillon	Test réalisé	Durée (temps de préparation)
R7T7_C1	10/10/2011	VS	rupture	1j (+2j)
R7T7_C2	15/10/2011	VS	rupture	1j (+2j)
R7T7_C3	20/10/2011	VS	rupture	1j (+2j)
R7T7_C4	02/11/2011	TT -300°C	rupture	4j (+3j)
R7T7_C5	12/12/2011	TT -300°C	fluage	échec (+3j)
R7T7_C6	14/12/2011	TT -300°C	fluage	8j (+3j)
R7T7_C7	16/01/2012	TT -300°C	fluage	14j(+3j)
R7T7_C8	12/03/2012	TT -300°C	fluage	17j (+3j)
R7T7_C9	03/07/2012	TT -300°C	rupture	4j (+3j)
R7T7_C10	30/07/2012	OG	microstructure	(+1j)
R7T7_C11	30/07/2012	TT -300°C	microstructure	(+1j)
R7T7_C12	05/10/2012	TT -300°C	rupture	4j (+3j)
R7T7_C13	18/10/2012	TT -300°C	traction	5j (+3j)
R7T7_C14	30/10/2012	TT -300°C + lixiviation statique	rupture	échec (+3j)
R7T7_C15	30/10/2013	TT -300°C + lixiviation dynamique	rupture	4j (+3j)
R7T7_C16	03/01/2013	TT -300°C	fluage	échec (+3j)
R7T7_C17	05/01/2013	TT -300°C	fluage	15j (+3j)
R7T7_C18	27/02/2013	TT -200°C	microstructure	(+1j)
R7T7_C19	27/02/2013	TT -100°C	microstructure	(+1j)
R7T7_C20	19/04/2013	TT -300°C	fluage	16j (+3j)
R7T7_C21	17/05/2013	TT -300°C	corrosion	16j (+3j)
R7T7_C22	12/12/2013	TT -300°C + corrosion	rupture	24j (+3j)

Tableau 22 – Conditions et résultats des tests de rupture

Échantillon	État de l'échantillon	$\sigma'_3$ (MPa)	$Q_{max}$ (MPa)
R7T7_C1	OG	15	511
R7T7_C2	OG	5	207
R7T7_C3	OG	15	∅
R7T7_C4	TT -300°C	10	335
R7T7_C9	TT -300°C	20	440
R7T7_C12	TT -300°C	5	160

Tableau 23 – Conditions et résultats des tests de fluage.

Échantillon	$\sigma'_3$ (MPa)	Fluide de pore	Température	$Q_{max}$ (MPa)	$\tau$
R7T7_C7	10	eau	ambient	295	22h13
R7T7_C8	20	eau	ambient	445	10h09
R7T7_C17	10	eau	50°C	280	0h48
R7T7_C20	10	eau	70°C	310	0h10

Tableau 24 – Conditions et résultats des tests de fluage considéré dans l'étude de la corrosion du verre

Échantillon	État de l'échantillon	Test réalisé
R7T7_C22	TT -300°C+ corrosion sous contrainte	rupture
R7T7_C15	TT -300°C+lixiviation dynamique	rupture
R7T7_C6	TT -300°C	fluage en sec
R7T7_C21	TT -300°C	fluage en corrosion

Échantillon	fin
R7T7_C22	$Q_{max}$ =305 MPa
R7T7_C15	$Q_{max}$ =288 MPa
R7T7_C6	$Q_{max}$ =275 MPa
R7T7_C21	recupéré pour microstructure

## Annexe B : Comparaison des méthodes numériques d'Euler et de Runge et Kutta

DANS la Partie IV de ce manuscrit, chapitre 4, nous avons interprété d'un point de vue théorique la propagation des fissures. Un modèle est utilisé dans lequel une loi relie par une exponentielle, la dérivée de  $l(t)$  à un polynôme de degré fractionné de  $l(t)$ . Cette équation différentielle peut se schématiser ainsi :

$$\frac{dl}{dt} \propto \exp \left( (l(t) + A)^{-3} + Bl(t) + C \frac{l(t)}{(l(t) + A)^3} \right) = P(l(t)). \quad (85)$$

Cette équation différentielle n'est pas solvable analytiquement. Nous l'avons donc résolue numériquement. Cependant, il y a une complication. Quelque soit la méthode numérique choisie, il faut pouvoir démontrer le critère de stabilité de cette équation. C'est-à-dire, il faut pouvoir prouver la stabilité, la convergence, l'existence et l'unicité de la solution, si on veut utiliser une résolution numérique. Or pour ce faire, il faut démontrer le caractère lipschitzien de la fonction  $P$  en  $l(t)$ . Ceci n'est pas si simple. Il faut pour cela démontrer :

$$| P(l_1) - P(l_2) | < \Lambda | P_1 - P_2 | \quad (86)$$

avec  $\Lambda$  indépendant de  $l$  et de  $t$ . On peut aussi, de façon "plus simple" démontrer que la dérivée de  $P$  est bornée. Pour commencer, dériver  $P$  n'est pas évident. Tout de même, une fois obtenue, on se retrouve face à une dérivée présentant un terme en exponentielle de  $P^2$  qui empêche de borner la fonction.

Toutefois, si le critère de stabilité n'est pas démontré, cela ne signifie pas qu'il n'y aura pas de solution. Démontrer que la fonction est lipschitzienne en  $l(t)$  est une condition suffisante. Mais pas nécessaire. Ainsi, on ne peut pas démontrer l'unicité de la solution,

mais on peut toujours, sur un intervalle, trouver Une solution. Il nous a semblé correct de comparer les résultats de deux méthodes numériques afin d'être plus sûr de nos résultats. Voici ces deux méthodes.

## La méthode d'Euler explicite

LA méthode d'Euler explicite a été considérée dans un premier temps car, comme nous allons le montrer, elle est assez simple et intuitive. Premièrement, on indique une longueur initiale,  $l_0$  et un pas de temps  $dt$ . Le principe de la méthode est alors de calculer pour chaque pas de temps la solution. On considère alors que,

$$\frac{dl}{dt} = \frac{l(t) - l(t - dt)}{dt}. \quad (87)$$

Ainsi, l'équation différentielle n'est plus qu'une simple équation à une inconnue. On calcule  $l(dt = 1)$ , à partir du  $l(0)$  fixé, puis  $l(t)$  à partir de  $l(t - dt)$ , et ainsi de suite... L'idée de cette méthode est de calculer pour chaque pas de temps  $dt$  la valeur de  $l$  connaissant la valeur du pas de temps précédent.  $dt$  correspond à la précision de la méthode.

L'avantage de cette méthode est qu'elle est très simple à comprendre et à mettre en place. L'inconvénient est que le temps de calcul est très long, que la solution dépend du point de départ,  $l_0$  (la solution peut diverger vers un résultat physiquement aberrant), et que le pas de temps peut aussi faire varier le résultat si il est trop imprécis.

## La méthode de Runge et Kutta d'ordre 4

LA méthode d'ordre 4 de Runge et Kutta (RK4) a l'avantage d'être plus stable, plus précise, et plus rapide à calculer. L'inconvénient est qu'elle est moins évidente et moins intuitive. En effet, cette méthode décompose une étape de calcul en quatre sous-étapes. Ainsi pour notre équation de type :

$$\frac{dl}{dt} = P(l(t)), \quad l(t = 0) = l_0, \quad (88)$$

la méthode RK4, pour ce problème, est donnée par les équations suivantes :

$$\begin{aligned} l_{n+1} &= l_n + \frac{1}{6} (k_1 + 2k_2 + 2k_3 + k_4) \\ t_{n+1} &= t_n + h \end{aligned} \quad (89)$$

où  $l_{n+1}$  est l'approximation en RK4 de  $l(t_{n+1})$ , et



$$\begin{cases} k_1 = hP(t_n, l_n), \\ k_2 = hP(t_n + \frac{1}{2}h, l_n + \frac{1}{2}k_1), \\ k_3 = hP(t_n + \frac{1}{2}h, l_n + \frac{1}{2}k_2), \\ k_4 = hP(t_n + h, l_n + k_3). \end{cases} \quad (90)$$

## Méthode employée

IL a finalement été observé qu'avec un pas de temps d'1s, la méthode d'Euler est quasiment équivalente à la méthode RK4. Pour un pas de temps inférieur, les deux méthodes se stabilisent et sont parfaitement cohérentes. Ainsi, même si il n'existe peut-être pas une solution unique d'un point de vue mathématique, on peut trouver une solution qui est physiquement correcte et qui peut-être validée à la fois par la méthode d'Euler et celle de Runge et Kutta.

Au final, la méthode RK4 est conservée, car calculer un palier de déformation de 24h, avec un pas de temps inférieur à la seconde prend plusieurs heures avec la méthode d'Euler, tandis qu'elle ne prend que quelques minutes avec la méthode RK4.

Le point d'initiation des deux méthodes,  $l_0$  est toujours à fixer et influe sur la convergence de la méthode numérique. Pour déterminer cette valeur initiale une valeur est choisie avec un pas de temps large (pour un temps de calcul réduit), puis quand la solution converge, on affine notre solution avec un pas de temps plus précis.

## Annexe C : Calcul des déformations en fluage secondaire

CETTE annexe débute à partir de l'équation (70) de la section 4.4.1, Partie IV, et décrit les étapes de calcul permettant d'obtenir les déformations de la Figure 58 de la section suivante (4.4.2).

L'énergie liée aux fissures,  $\Delta W$ , est obtenue en intégrant le facteur d'intensité des contraintes au carré,  $K_I^2$ , sur la circonférence d'une fissure,  $2\pi a$ , ainsi que sur la propagation des fissures,  $dl$ , de 0 à  $l(t)$ . Cette description provient d'une hypothèse annoncée par Deshpande and Evans [2008] faisant remarquer que le facteur d'intensité des contraintes varie en  $l(t)/a$  où  $a$  est constant. Ainsi, l'intégration sur la circonférence des fissures donne une constante, et l'intégration sur la propagation des fissures, initialement en  $dx$  peut se décrire par  $dl$ . Ainsi  $\Delta W$  de l'équation (70) peut s'écrire :

$$\Delta W = 2\pi a \int_0^{l(t)} \left( \frac{1 - \nu_0^2}{E_0} K_I^2 - 2\gamma \right) dl. \quad (91)$$

Le facteur d'intensité des contraintes, simplifié pour le cas du fluage secondaire, et élevé au carré, s'écrit à partir de l'équation (68) comme suit :

$$K_I^2 = \frac{F_w^2}{(\pi(l(t) + \beta a))^3} + \frac{4}{\pi} \sigma_3'^2 l(t) - \frac{2}{\pi} F_w \sigma_3' \sqrt{\frac{l(t)}{(l(t) + \beta a)^3}}. \quad (92)$$

Lorsque nous allons dériver l'énergie pour obtenir les déformations, le terme constant en  $2\gamma$  s'annulera. Nous ne le prenons alors pas en compte pour simplifier nos écritures. Ainsi on ne calcule que :

$$\begin{aligned} \Delta W = & \frac{1-\nu_0}{E_0} 2\pi a \int_0^l \left( \frac{F_w^2}{(\pi(l(t)+\beta a))^3} - 2\gamma \right) dl + \frac{1-\nu_0}{E_0} 2\pi a \int_0^l \left( \frac{4}{\pi} \sigma_3'^2 l(t) - 2\gamma \right) dl \\ & - \frac{1-\nu_0}{E_0} 2\pi a \int_0^l \left( \frac{2}{\pi} F_w \sigma_3' \sqrt{\frac{l(t)}{(l(t)+\beta a)^3}} - 2\gamma \right) dl. \end{aligned} \quad (93)$$

La première intégrale donne la formulation suivante :

$$F_w^2 \times \frac{a}{\pi^2(\beta a + l(t))^2} \frac{1-\nu_0}{E_0} = F_w^2 C_1. \quad (94)$$

Le second terme est plus simple et s'écrit :

$$\sigma_3'^2 \times 4al(t)^2 \frac{1-\nu_0}{E_0} = \sigma_3'^2 C_2. \quad (95)$$

Finalement, le troisième bien plus complexe est :

$$F_w \sigma_3' \times \frac{1-\nu_0}{E_0} \frac{8a}{\sqrt{\beta a + l(t)}} \left[ \sqrt{l(t)} - \sqrt{\beta a + l(t)} \log \left( \sqrt{\beta a + l(t)} + \sqrt{l(t)} \right) \right] = F_w \sigma_3' C_3. \quad (96)$$

L'énergie du système,  $W$ , est constituée de deux termes,  $W_0$  et  $\Delta W$ . Chacun est à dériver par les contraintes pour obtenir les déformations volumiques, qui seront la somme de tous ces termes :

$$\varepsilon_{kk} = \frac{\partial W}{\partial \sigma_{kk}} = \frac{\partial W_0}{\partial \sigma_1} + 2 \frac{\partial W_0}{\partial \sigma_3} + N_c \frac{\partial \Delta W}{\partial \sigma_1} + 2N_c \frac{\partial \Delta W}{\partial \sigma_3}. \quad (97)$$

Les quatre dérivées sont obtenues connaissant l'écriture de  $F_w$  (équation (60), section 4.2) :

$$\begin{aligned} \frac{\partial W_0}{\partial \sigma_1} &= \frac{1+\nu_0}{2E_0} (\sigma_1' - \sigma_3') + \frac{3(1-2\nu_0)}{16E_0} (\sigma_1' + \sigma_3') \\ \frac{\partial W_0}{\partial \sigma_3} &= \frac{1+\nu_0}{2E_0} (\sigma_3' - \sigma_1') + \frac{3(1-2\nu_0)}{16E_0} (\sigma_1' + \sigma_3') \\ \frac{\partial \Delta W}{\partial \sigma_1} &= C_1 c^4 (2A_1^2 \sigma_1' - 2A_1 A_3 \sigma_3') - C_3 \sigma_3' A_1 c^2 \\ \frac{\partial \Delta W}{\partial \sigma_3} &= C_1 c^2 (-2A_1 A_3 \sigma_1' + 2A_3^2 \sigma_3') + 2C_2 \sigma_3' \\ &\quad - c^2 C_3 A_1 \sigma_1' + 2C_3 A_3 \sigma_3' c^2 \end{aligned} \quad (98)$$

Ainsi, par une méthode numérique itérative (RK4), on connaît  $l(t)$  et  $K_I(t)$  point par point. On en déduit par ces deux dernières équations les déformations volumiques à chaque pas de temps. On peut alors tracer son évolution avec le temps comme dans la Figure 58 de la section 4.4.2.

## Annexe D : Publications liées à ce travail

C E travail de thèse est à l'origine de quatre publications. La première, parue chez *International Journal of Fracture* présente la microstructure initiale du réseau de fissure introduit par choc thermique, et a été placée dans la Partie III de ce manuscrit. Les trois autres étant encore en review ou en presse sont données ici. Ainsi, la seconde publication, en presse chez *Journal of Geophysical Research*, présente les résultats de fluage secondaire et tertiaire ainsi que les résultats du modèle théorique. La troisième, en presse chez *International Journal of Fracture*, présente les travaux de microstructure sur les échantillons initiaux, endommagés et *post-mortem*. Enfin, la dernière publication, en review chez *Mechanics of Time-Dependent Materials*, présente les résultats de corrosion du verre.

Ces quatre publications sont données ici.

# Brittle Creep and Sub-Critical Crack Propagation in Glass submitted to Triaxial Conditions.

Céline Mallet<sup>1</sup>, Jérôme Fortin<sup>1</sup>, Yves Guéguen<sup>1</sup>, Frédéric Bouyer,<sup>2</sup>

## Key Points

- Brittle creep and failure in tertiary creep are observed in glass.
- Creep processes are explained from sub-critical crack propagation.
- A micro-mechanical model allows to predict the data.
- Data on glass are compared to rock behavior.

Corresponding author: C. Mallet, Laboratoire de Géologie, École Normale Supérieure, Paris, France. (mallet@geologie.ens.fr)

<sup>1</sup>Laboratoire de Géologie, École Normale Supérieure, CNRS, UMR 8538, Paris, France.

<sup>2</sup>CEA, Site de Marcoule DTCD/SECM, Bagnols-Sur-Cèze, France.

D R A F T                      October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

## Abstract.

An experimental work is presented that aimed at improving our understanding of the mechanical evolution of cracks under brittle creep conditions. Brittle creep may be an important slow deformation process in the Earth's crust. Synthetic glass samples have been used to observe and document brittle creep due to slow crack-propagation. A crack density of 0.05 was introduced in intact synthetic glass samples by thermal shock. Creep tests were performed at constant confining pressure (15 MPa) for water saturated conditions. Data were obtained by maintaining the differential-stress constant in steps of 24 hours duration. A set of sensors allowed us to record strains and acoustic emissions during creep. Temperature effect on creep, was investigated from ambient temperature to 70°C. The activation energy for crack growth was found to be 32 kJ/mol. In secondary creep, a large dilatancy was observed that did not occur in constant strain-rate tests. This is correlated to acoustic emission activity associated with crack growth. As a consequence, slow crack growth has been evidenced in glass. Beyond secondary creep, failure in tertiary creep was found to be a progressive process. The data are interpreted through a previously developed micromechanical damage model that describes crack-propagation. This model allows one to predict the secondary brittle creep phase and also to give an analytical expression for the time to rupture. Comparison between glass and crystalline rock indicates that the brittle creep behavior is probably controlled by the same process even if, stress sensitivity for glass is lower than for rocks.

D R A F T

October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

1. Introduction

Time is a fundamental parameter in geological processes. Because there is a difference of several orders of magnitude in strain rates between geological and laboratory rates, it is important to better understand the time-dependent mechanics that appear in crustal rocks. Slow phenomena, especially slow crack propagation, are of great interest either for understanding fault mechanics and the seismic cycle, or for designing geological reservoirs. Failure of brittle rocks results from crack growth and, sometimes, coalescence. Cracks also control mechanical, elastic and transport properties of rocks [Brace et al., 1968; Walsh, 1965a, b]. The aim of this work is to focus on the long term mechanical behavior of cracks during slow macroscopic deformation. In this case, cracks may re-open and propagate at a constant applied stress. This phenomenon is called “brittle creep” [Atkinson, 1984; Atkinson and Meredith, 1987].

Studies on natural rocks loaded in triaxial compression under creep conditions have shown that samples can deform under a constant stress over time. This has been observed in sandstones [Lockner and Byerlee, 1977; Baud and Meredith, 1997; Heap et al., 2009a, b], in granite [Wu and Thomsen, 1975; Lockner, 1993, 1998; Fujii et al., 1999], and in basalt [Meredith and Atkinson, 1985; Nam et al., 2010; Heap et al., 2011]. However, time-dependent brittle creep in rocks is not straightforward to understand and is widely discussed in the literature [Paterson and Wong, 2005]. Data on natural rocks are difficult to interpret as rocks are often characterized by a complex microstructure.

Our study is focused on glass that has a much simpler and homogeneous micro-structure [Ougier-Simonin et al., 2010]. Several studies on crack propagation in glass have been

published like those of Orouan [1944] or Freiman [1984], among others. However, none of these studies addressed the issue of crack propagation under triaxial stress conditions.

Crack propagation in glass is motivated by another independent interest: glass is used for nuclear waste disposal. Investigations on long time scales of cracked glass is therefore of direct industrial and environmental interest [Dubé et al., 2010; Doquet et al., 2012; Barth et al., 2013].

Since the work of Griffith [1921], glass has played a key role in understanding the fundamentals of fracture mechanics. Glass, because of its ideally perfect elastic-brittle behavior, can provide a useful reference when compared to more complex materials such as rocks. Fracture mechanics started from experiments on glass and was later introduced in rock mechanics and geophysics [Rice and Rosengren, 1968; Wiederhorn and Bolz, 1970; Rudnicki and Rice, 1975].

We report here the results of triaxial experiments performed on cylinders of borosilicate glass samples. Cracks were introduced by thermal shock. The resulting crack network was studied by Scanning Electron Microscope (SEM) [Mallet et al., 2013]. Thus, the initial crack network, crack length, and crack density are determined directly from the microstructure.

The creep experiments were performed following the methodology of stress-stepping [Heap et al., 2009a, 2011]. In such experiments the major controlling parameters are axial stress, confining pressure and temperature.

In this paper, we present in section 2 the experimental methodology: sample characteristics and experimental set up. In section 3, we present the experimental results obtained during secondary and tertiary creep. In section 4, a theoretical model, previously de-

veloped by [Lawn and Wilshaw, 1975; Ashby and Sammis, 1990; Deshpande and Evans, 2008; Bhat et al., 2011, 2012], is used to interpret our data. Finally, at the end of section 4, the parameters sensibility is discussed.

Note that in the full paper, we use the convention that compressive stresses and strains are positive. The maximum and minimum (compressive) principal stresses are denoted by  $\sigma_1$  and  $\sigma_3$ , respectively. The pore pressure is denoted by  $P_P$ , and the difference between the confining pressure ( $P_C = \sigma_2 = \sigma_3$ ) and the pore pressure is referred to as “the effective confining pressure”, denoted by  $\sigma'_3$ . The differential stress  $\sigma_1 - \sigma_3$  will be denoted by  $Q$  and the effective axial stress,  $\sigma_1 - P_P$ , is denoted  $\sigma'_1$ .

## 2. Experimental methodology

### 2.1. Samples and thermal cracking

The boro-silicate glass samples are produced by slowly cooling them such that crack formation is inhibited and internal stresses are minimized (Figure 1a). This reproducible method was developed by the French Atomic Energy Commission (CEA) laboratory. The glass is homogeneous and the porosity is about 1% due to a few isolated air bubbles trapped into the glass matrix (this porosity is not connected). We used cylindrical specimens of 80 mm length and 40 mm diameter. Cracks were introduced by a thermal treatment following the protocol described by Ougier-Simonin et al. [2011]: samples were heated in an oven at 1°C/min up to 300°C. They were kept at this constant temperature for 2 hours. Then, samples were quenched, in water at room temperature, in less than 5 s. The resulting crack network was investigated by Mallet et al. [2013] (Figure 1b), who showed that the average crack network presents a transverse isotropic symmetry and a

global crack density, as defined by Walsh [1965a, b], of 0.05 was measured. Cracks can be approximately described as penny-shape cracks of radius  $a=1.5\pm0.5$  mm.

### 2.2. Triaxial apparatus and measurements

Experiments were performed using a conventional triaxial apparatus (axially symmetric:  $\sigma_2 = \sigma_3$ ) installed at the Laboratoire de Géologie in the École Normale Supérieure in Paris (see for example the description by Ougier-Simonin et al. [2010]). The confining pressure,  $P_C$ , is provided by a pump system using oil and can reach up to 100 MPa. The sample is isolated from oil by a neoprene jacket. The pore pressure,  $P_P$ , controlled by two independent pumps related to the top and the bottom of the sample, can reach 100 MPa. Pore fluid is a mineral water. This water is chosen to be at equilibrium with glass composition. It is a non-chemically reactive water in our case. The axial stress, applied by a piston, can be increased up to 700 MPa for a 40 mm-diameter sample. Triaxial experiments can be done either at a fixed displacement rate or at a fixed stress rate. The temperature of the cell is controlled with an accuracy of  $\pm0.5^\circ\text{C}$  and can reach  $200^\circ\text{C}$ . Three temperatures were investigated:  $20^\circ\text{C}$ ,  $50^\circ\text{C}$  and  $70^\circ\text{C}$ .

Local strains are measured using four pairs of strain gages (4 axial and 4 radial). The gages are glued directly onto the sample surface at mid-height around the circumference. Strain gages are 5 mm long, Tokkyosokki TML FCB gages. Axial and radial strains are calculated using the average values of the four vertically and radially oriented strain gages, respectively. Data are recorded at 1 Hz frequency through a dedicated interface. From the locally measured axial,  $\varepsilon_{ax}$ , and radial,  $\varepsilon_{rad}$ , strains, the local volumetric strain is calculated as  $\varepsilon_{vol} = 2\varepsilon_{rad} + \varepsilon_{ax}$ . In addition, global axial strains are determined by

measuring the total displacement of the piston, with three external gap sensors using Foucault currents, and corrected for the stiffness of the machine.

In addition to the strain measurements, 16 piezoelectric sensors are glued directly on the surface of the sample. In a passive mode, these sensors can record the Acoustic Emissions (AE) that take place in the sample. The AE are amplified at 40 dB and are discretely recorded with a maximum rate of 12 AE/s [Thompson *et al.*, 2005; Schubnel *et al.*, 2007; Fortin *et al.*, 2009].

### 2.3. Experimental procedure

Two different kinds of experiment were carried out in this study. In each case, the hydrostatic pressure was first increased up to 15 MPa. Then, pore pressure was increased up to 5 MPa (water), the value at which it was constant during the experiment. Then, the temperature was increased. To achieve a full saturation, the sample was maintained at these conditions for two days.

The first kind of experiment is a reference experiment done at a constant strain-rate ( $2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ ). From this experiment, noted Exp 0, we were able to determine the maximum differential stress  $Q_{max}$  corresponding to the failure.

Then, creep experiments in compression were performed following the methodology described by Heap *et al.* [2009a, 2011]: the stress evolution with time is summarized on Figure 2: starting from 80% of  $Q_{max}$ , we successively increased the constant load by 10 MPa (3% of  $Q_{max}$ ) for 24 hours long creep phases during which primary, secondary and ultimately tertiary creep (during the last step) were observed. The first creep test (Exp 1) was performed at an effective confining pressure of 10 MPa and at ambient temperature (20°C). The second and the third creep tests (Exp 2 & 3) were performed

with the same effective confining pressure as Exp 1 but at higher temperature (50°C and 70°C, respectively). Exp 4 was performed in the same condition as Exp 1 but at higher effective confining pressure (20 MPa). Table 1 reports the experimental conditions for the 4 experiments.

## 3. Results

### 3.1. Constant strain rate experiments: reference tests

During the first part of the constant-strain-rate loading the sample deformation is dominated by elastic compaction (Figure 3a). At a differential stress of  $D'=190$  MPa, dilatancy appears and becomes more important than compaction. According to the studies of Heap *et al.* [2009a, 2011], we expect that time dependent brittle creep can develop at any stress level above  $D'$  within a realistic time scale in laboratory experiments. As a consequence, our creep experiments were performed at stress levels beyond  $D'$ .

Differential stress shows a linear increase with time up to failure (Figure 3b). A few stress drops (marked by arrows) are observed close to the failure and may represent local micro-failures (foreshocks). The dynamic failure of the sample is marked by a rapid and pronounced stress drop. Failure is an abrupt and instantaneous phenomenon. In this experiment, it occurred at differential stress level of  $Q_{max}=335$  MPa.

### 3.2. Constant stress experiments: secondary creep

In all the experiments, the response is elastic during the first part of the loading. Compaction predominates over dilatancy up to the critical stress state  $D'$ . Beyond  $D'$  dilatancy dominates (4a and b). We observed that the value of differential stress  $Q$  corresponding to  $D'$  occurs at a constant value  $Q=175\pm 10$  MPa. The first stress step was fixed for Exp



157 1 and 3 at  $Q=210$  MPa, beyond the stress state  $D'$ . At each step, dilatancy increases.

158 A comparison of the evolution of the volumetric strain obtained in creep and in con-  
159 stant strain-rate experiments shows that creep enhances dilatancy (comparison between  
160 the plain and dashed lines in Figures 4a and b). Also, a comparison between Figure 4a  
161 (experiment done at 20°C) and Figure 4b (experiment performed at 70°C) shows that  
162 temperature enhances dilatancy. At the end of the last step before the failure step, the  
163 dilational volumetric strain reaches a value of -0.5% for Exp 1 and -0.9% for Exp 3.

164 The initial creep phase (primary phase) is always associated with a high level of AE  
165 rate (Figure 5a). Secondary creep shows a smaller but non-zero average AE rate. Near  
166 the end of the experiment (close to the last step and failure), the AE rate increases and  
167 bursts of AE rate are more frequent. The primary and secondary creep phases during one  
168 step can be identified from Figure 5b: primary creep is associated with fast strain-rate  
169 and a high level of AE rate (from 8 AE/s down to 1) ; then, secondary creep follows.  
170 During this second phase, volumetric strain increases slowly and regularly (at a constant  
171 strain-rate). AE rate is also constant around 1 AE/s. However, strain jumps can occur  
172 and correspond to bursts of AE (A arrow). Note that the volumetric strain (Figure 5b)  
173 shows small oscillations of a period  $T=6.10^{-4}$  s. These small oscillations are due to the  
174 fluctuations of the room temperature ( $20^{\circ}\text{C}\pm 0.5^{\circ}\text{C}$ ). Similar observations were reported  
175 in granular materials [Divoux *et al.*, 2008].

176  
177 The above results allow us to conclude that: (i) axial strain and dilatancy are important  
178 during creep tests compared to what is observed during constant strain-rate tests. (ii)  
179 Temperature has a strong effect on dilatancy and increases the strain rate during the

D R A F T

October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

180 creep. (iii) Secondary creep is associated with a non zero AE rate. (iv) The average and  
181 maximal AE rates increase when failure is approached.

182 Note that we only present in this section the volumetric strain to describe the creep  
183 behavior. The reason is that the sub-critical crack propagation has a strong effect on  
184 the dilatancy of the whole sample. Thus the volumetric strain are used to describe this  
185 dilatancy. Creep effects can also been observed with axial strain. In order to not omit  
186 this point, axial will be presented to describe the tertiary creep in Section 3.4.

### 3.3. Temperature dependency and activation energy

187 The activation energy was determined from the temperature effect on secondary creep.  
188 Figure 6a reports the time derivative of volumetric strain (thus the strain-rate) at  
189  $Q_{max}=265$  MPa for three different experiments (Exp 1 at 20°C in blue, Exp 2 at 50°C in  
190 orange and Exp 3 at 70°C in red). There is a first decelerating part (OA), following by  
191 the constant strain rate of secondary creep (AB). It is observed that creep rate increases  
192 with increasing temperature.

193 The constant secondary creep rate is plotted (AB amount), in logarithmic scale, as a  
194 function of the inverse of temperature on Figure 6b. The creep rate value is obtained from  
195 the last point of each curve on Figure 6a. The slope of the Figure 6b is the activation  
196 energy  $E_a$ . One gets  $E_a=32$  kJ.mol $^{-1}$ .

197 The determination of the activation energy requires data measurement at different tem-  
198 peratures, but at the same stress level. For Exp 1, 2 and 3, the seven first steps correspond  
199 to the same stress level, respectively. Thus for each step, the activation energy can be  
200 obtained (Table 2). The scattering of the results indicates that the activation energy  
201 is known with an accuracy of  $\pm 20\%$ . A better accuracy on the activation energy would

D R A F T

October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

require measurements over broader range of temperature. This has not been possible because the experiments are long ones and the sealing of the set up (sample jackets, glues, sensors,...) cannot be guaranteed at 150°C or 200°C for several weeks.

### 3.4. Tertiary creep experiments: time to failure

In addition to primary and secondary creep, the last creep step exhibits tertiary creep with increasing strain rate ultimately leading to failure of the sample (Figure 7). Failure appears to be the end result of a progressive process.

At higher temperature (Exp 3), time to rupture is much shorter compared to Exp 1 (10 min and 22h 13min, respectively). This is consistent with the Exp 2 performed at 50°C that presents a time to rupture of 48 min (Table 1).

## 4. Interpretation of the results and discussion

### 4.1. Subcritical crack growth law

As demonstrated by *Johnson and Paris* [1968], *Lawm* [1975] and *Lawm and Wilshaw* [1975], cracks can propagate in mode I, below the critical stress level corresponding to  $K_{IC}$  (critical value of the stress intensity factor). In this “subcritical regime” crack propagation rate ( $dl/dt$ ) is assumed to be thermally activated. Considering that crack propagation takes place through an elementary surface,  $s$ , *Lawm* [1975] and *Lawm and Wilshaw* [1975] have shown that crack propagation is driven by  $s(K_I^2/E_0 - 2\gamma)$  where  $E_0$  is the Young’s modulus and  $\gamma$  is the thermodynamic surface energy. The crack propagation rate is described by *Darot and Gueguen* [1986] as:

$$\frac{dl}{dt} = i_0 e^{\left(\frac{K_I^2}{K_0^2} - 2\gamma\right)} \left[ \frac{K_I^2}{K_0^2} \left( \frac{K_I^2}{K_0^2} - 2\gamma \right) \right] \quad (1)$$

In equation (1),  $T$  corresponds to temperature. The parameter,  $i_0$ , is a characteristic crack speed. We assume that it is defined as the product of the inter-atomic distance,  $b$ , and the atomic vibration frequency,  $\nu$ ,  $i_0 \simeq b\nu \simeq 10^4 \text{ m s}^{-1}$  ( $b \simeq 10^{-9} \text{ m}$ ;  $\nu \simeq 10^{13} \text{ s}^{-1}$ ) [Lawm and Wilshaw, 1975].

Other commonly used subcritical propagation laws are power laws. They are also empirical laws [Charles, 1958; Wiederhorn and Bolz, 1970; Brantut et al., 2012]. These laws are difficult to demonstrate experimentally because of the strong  $K_I$  dependence. We thus use equation (1) because its theoretical derivation is clear [Darot and Gueguen, 1986; Vanel et al., 2009].

### 4.2. Geometry of the crack network and $K_I$ calculation

A key assumption is the choice of an appropriate description for the crack microstructure. Following *Ashby and Sammis* [1990], *Deshpande and Evans* [2008] and *Bhat et al.* [2011, 2012] we rely on a 3D wing-crack model (Figure 8): the initial, mono-sized, cracks are oblique to the principal stresses, with a penny-shaped geometry and radius,  $a$ . Application of  $\sigma'_1$  and  $\sigma'_3$  leads to a wing-crack formation and propagation. From this model, it is possible to calculate the stress-intensity factor at a crack tip (point A in Figure 8).

The stress intensity factor  $K_I$  at crack tip is a result of three forces:

(i) a wedging force  $F_w$  due to sliding of the initial oblique crack:

$$F_w = (A_1 \sigma'_1 - A_3 \sigma'_3) a^2, \quad (2)$$

where  $A_1$  and  $A_3$  are constants depending on the friction coefficient of cracks given by *Ashby and Sammis* [1990]. This force results in a  $K_I$  contribution:

$$K_I^a = \frac{F_w}{[\pi(l + \beta a)]^{3/2}}, \quad (3)$$

where  $\beta$  ( $=0.1$ ) was introduced by *Ashby and Sammis* [1990] to give a limiting value of  $K_I$  as  $l(t)$  tends to 0.

(ii) the remote compressive stress  $\sigma'_3$  that results in:

$$K_I^b = -\frac{2}{\pi}\sigma'_3\sqrt{\pi l(t)}. \quad (4)$$

(iii) the stress interaction,  $\sigma'_i$ , due to the attractive force between two cracks, that results into a supplementary  $K_I$  term:

$$K_I^c = \frac{2}{\pi}\sigma'_i\sqrt{\pi l(t)}, \quad (5)$$

where the stress interaction is described as:

$$\sigma'_i = \frac{F_w}{d^2}, \quad (6)$$

and distance  $d$  represents the average spacing between cracks:  $d$  varies with  $l(t)$  and decreases when  $l(t)$  increases.

Finally, the Ashby-Sammis model leads to:

$$K_I = \frac{F_w}{(\pi(l(t) + \beta a))^{3/2}} - \frac{2}{\pi}(\sigma'_3 - \sigma'_i)\sqrt{\pi l(t)}. \quad (7)$$

Equations (7) and (1) allow us to describe the crack length evolution. It is possible as well, from the same model [*Deshpande and Evans*, 2008], to calculate the strain evolution for a set of loading conditions using

$$\Delta\varepsilon_{ij} = \frac{\delta W}{\delta\sigma_{ij}}, \quad (8)$$

where the total free energy,  $W$ , is equal to the sum of two contributions: the uncracked solid strain energy density  $W_0$  and the contribution of cracks,  $N_c\Delta W$  (where  $N_c$  represents the number of cracks per unit volume defined from the crack density as,  $\rho_c = N_c a^3$ ). Expressions of  $W_0$  and  $\Delta W$  are found in *Deshpande and Evans* [2008].

### 4.3. Interpretation of secondary creep data

In primary and secondary creep phases, interactions between cracks are negligible. The last term in equation (7) is found to be very small as long as  $l(t) < l_c$ . Hence, equation (7) can be simplified as:

$$K_I = \frac{F_w}{(\pi(l(t) + \beta a))^{3/2}} - \frac{2}{\pi}\sigma'_3\sqrt{\pi l(t)}. \quad (9)$$

A numerical resolution of the system of equations (1), (8) and (9) allows us to calculate the strain at each stress step (see Table 3 for parameter values). The experimental data and predicted values are in close agreement (Figure 9a). Using equations (1) and (9) the crack propagation is calculated to be 0.38 mm during the sixth 24 hours-step of Exp 1. The agreement between experimental data ( $3.2 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ /MPa slope) and theoretical predictions ( $3.0 \cdot 10^{-9} \text{ s}^{-1}$ /MPa slope) is satisfactory. Calculating the crack length gives a mean crack propagation of 3.2 mm after the eight successive steps for Exp 1. This result

is in a good agreement with the microstructural measurements that can be found in the study of *Mallet et al.* [2014] where cracked glass samples are submitted to brittle creep tests and are recovered before their failure in tertiary creep. Cracks have been observed and measured. An average crack length of 3 mm were obtained.

#### 4.4. Interpretation of tertiary creep data

In the final creep phase (tertiary creep) cracks interactions are dominant and equation (7) can be simplified as:

$$K_I = \frac{2}{\pi} (\sigma'_i - \sigma'_3) \sqrt{\pi l(t)}. \quad (10)$$

This approximation is valid if  $l(t) \geq l_c$ . The differential equation for  $l(t)$  resulting from equations (1), (6) and (10) cannot be solved without some additional approximations. Following *Vanel et al.* [2009], an appropriate one is to consider the stress interaction,  $\sigma'_i$ , to be constant. Crack interactions are dominant when crack has a critical crack length  $l_c$  and crack mean spacing is characterized by a critical distance,  $d = d_c$ . Assuming  $l = l_c$ ,  $d = d_c$ , the equations can be solved analytically. Of course, during tertiary creep cracks propagate beyond  $l_c$  but by a very small amount: at the end of tertiary creep, the final  $l$  value is then close to, but slightly larger than  $l_c$ . The validity of the previous approximation results from the fact that crack interactions are short range interaction. Noting  $\sigma' = \sigma'_i - \sigma'_3$ , equation (10) becomes:

$$K_I = f \sqrt{l(t)}, \quad (11)$$

where  $f$  is a function that depends only on  $\sigma'_1$  and  $\sigma'_3$ :

$$f = f(\sigma') = \frac{2}{\sqrt{\pi}} \left( \frac{(A_1 \sigma'_1 - A_3 \sigma'_3) d_c^2}{d_c^2} - \sigma'_3 \right). \quad (12)$$

Combining equation (11) together with equation (1), at constant  $\sigma'_1$ ,  $\sigma'_3$  and  $T$ , equation (1) can be written:

$$\frac{dl}{dt} = \frac{\lambda}{\tau} \exp \left( \frac{l(t)}{\lambda} \right) \quad (13)$$

where,  $\lambda$  and  $\tau$  are constants. Using the above expressions of  $f$  from equation (12), the expressions of  $\lambda$  and  $\tau$  are found to be:

$$\lambda = \frac{\pi E_0 k T}{4 s \sigma'^2}, \quad (14)$$

and

$$\tau = \frac{\lambda}{T} \exp \left( \frac{E_a + 2\gamma s}{k T} \right). \quad (15)$$

The simple differential equation (13) can be solved exactly. The solution is:

$$l(t) - l_c = -\lambda \ln \left( 1 - \frac{t}{\tau} \right). \quad (16)$$

Note that  $l(t)$  diverges when  $t$  approaches  $\tau$  [*Vanel et al.*, 2009]. Physically this divergence expresses the overall failure of the sample. Thus  $\tau$  describes the predicted time to rupture. The crack length at the beginning of the last creep step (3.2 mm) gives the  $l_c$  value. Then, equation (16) was used to calculate the crack length evolution with time (Figure 10) for each of the four experiments. Predicted times to rupture are reported in

Table 1. The time to rupture predictions are very close to experimental results for the four experiments with a maximum error of 9%. The agreement between observations and model results make sense only in the light of uncertainty that will be discussed in the following.

#### 4.5. Parameters sensitivity

##### 4.5.1. Activation energy and temperature

The activation energy is found to be  $32 \text{ kJ.mol}^{-1}$  with a 20% accuracy. Equation (15) shows that increasing  $E_a$  results in increasing  $\tau$  because the exponential term is the dominant one. Varying the activation energy modifies the characteristic time to reach the secondary creep phase (Figure 11a). For  $E_a < 28 \text{ kJ.mol}^{-1}$ , or  $E_a > 38 \text{ kJ.mol}^{-1}$ , disagreement between predicted strain and observed strain is larger than 60%. For  $28 \leq E_a \leq 38 \text{ kJ.mol}^{-1}$ , predictions are in reasonable agreement with data (with a maximal error of 30%).

An uncertainty of  $\pm 20\%$  on  $E_a$  modifies the  $\tau$  prediction (Figure 11b). This uncertainty leads to a time to rupture prediction between 2 and 375 h for the failure of Exp 1. Although there is some uncertainty about  $E_a$ , predictions are in good correlation with experimental data for the 4 experiments. The error bar on  $E_a$  is probably lower than 20%. Note however that, in the case of rocks, the uncertainty on  $E_a$  is likely to be larger, so that the time to rupture predictions are probably very uncertain.

##### 4.5.2. Sensitivity to other parameters: $l_c$ , $\gamma$ , $\rho_c$

In equation (15) other parameters than the activation energy have a strong effect on the model predictions. In particular, three of them are important: the critical crack length,

$l_c$  that determines the tertiary creep threshold, the fluid effect described by the surface energy,  $\gamma$  and the initial crack density,  $\rho_c$ .

Considering a statistical experimental variation of  $\pm 25\%$  on the  $l_c$  value, time to rupture varies by  $\pm 30\%$ . Unfortunately it is difficult to determine  $l_c$  with accuracy because it corresponds to an experimental threshold. Note however that the  $l(t)$  accuracy of  $\pm 25\%$  is sufficient to provide the right order of magnitude on the time to rupture.

The presence of pore fluid reduces the surface free energy,  $\gamma$  [Orowan, 1944]. Parameter  $\gamma$  in equations (1) and (15) takes this effect into account. This parameter characterizes the surface energy between glass and the pore fluid. In dry conditions,  $\gamma_{dry}$  is found to be  $\approx 1.3 \text{ J.m}^{-2} \pm 5\%$  [Darot and Gueguen, 1986]. In water saturated case this value is about  $\gamma_{sat} = 1.0 \text{ J.m}^{-2}$ . The presence of water decreases  $\gamma$ . Then a crack can propagate at a lower stress level. In the experimental condition of Exp 1, if pore fluid is changed from water saturated to dry conditions, the predicted time to rupture is increased from 23h35 to 8 days, or, the stress state (295 MPa) has to be increased up to 330 MPa to reach a similar predicted time to rupture (20h48).

Initial crack density is the third important parameter. Considering an initial crack density of 0.5 (a very high value) instead of 0.05 results (approximately) in a strain rate increased by an order of magnitude. If the initial crack density is 0.005 (a very low value) the secondary creep strain rate decreases by one order of magnitude (Figure 11c). The initial crack density has a strong influence on strain prediction. It will result in a variation of  $d_c$  and thus, of  $l_c$ . Note that for glass, crack density is known from microstructural observations with an accuracy that is sufficient for calculations. For rocks, the initial crack density cannot be easily obtained from microstructural observations, but it can

be inferred from ultrasonic velocities [Fortin *et al.*, 2011; Guéguen and Kachanov, 2011; Mallet *et al.*, 2013].

Several other parameters have a negligible effect on time to failure and strain rate evolution. This is the case for the initial crack radius,  $a$ : as  $K_I$  varies with the ratio  $a/l(t)$ . Also the variation of the Young's modulus does not affect the prediction because it is balanced by the large variation in  $K_I$ .

Another important parameter in equations (1) and (15) is the elementary surface for crack propagation,  $s$ . This parameter is key for the stress dependence, as shown by equation (1). This point is discussed below.

#### 4.5.3. Stress sensitivity and comparison with natural rock

Can the previous model be used in the case of a natural rock? Glass is a much simpler material than rocks. But if brittle creep in rocks results of sub-critical crack growth, the previous model may capture the key process. The previous results may be of great interest to better understand brittle creep in rocks. Some of the main experimental results on granite, sandstone and basalt are discussed below. We compare them to our results of Exp 1 (Figure 12, blue dots). The compared data are those of: (i) Lockner [1993], on Westerly granite (experiment performed in water saturated condition, at ambient temperature and at an effective confining pressure of  $\sigma'_3=20$  MPa). (ii) Heap *et al.* [2009a], on Darley Dale sandstone and (iii) Heap *et al.* [2011], on Mont Etna's basalt. These two last data sets come from experiments performed in water saturated conditions and at ambient temperature. Effective confining pressure was  $\sigma'_3=30$  MPa. Volumetric strain-rate creep data can be extracted from these previous works and are reported on Figure 12. It appears that the

effect of differential stress is clearly less important in glass than in rocks. Volumetric strain-rate increases with differential stress in rocks and in glass. However the stress sensitivity for glass is lower than that for rocks. The values of volumetric strain-rate in glass (between  $10^{-6} - 10^{-7} \text{ s}^{-1}$ ) are lower than the values observed for basalt and sandstone and higher than those for granite. In the study of Corneliuss and Scott [1993] the same observation has been done. These authors observed that glass material is less stress sensitive than rocks. They attribute this difference to the variation of the material structure. An amorphous material seems to be less stress sensitive.

The previous theoretical model implies (equation (1)) that the stress sensitivity is controlled by  $s$ , the elementary surface for crack-propagation. In glass, a  $s$ -value of  $3.2 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$  has been reported in the literature [Darot and Gueguen, 1986; Reuschlé, 1989; Meredith, 1990]. Glass is amorphous so that the elementary crack jumps are probably associated with the lowest  $s$  values. In minerals, one may expect a larger  $s$  value because there is a crystallographic order and an elementary cell. Indeed, previous data on quartz give  $s \sim 4.1 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$  [Reuschlé, 1989; Meredith, 1990]. Using this last value and the theoretical model, the effect of  $s$  value can be quantified. On Figure 12b quartz predictions (in saturated conditions) are reported and compared to glass predictions and data (all other parameters being equal). The strain-rate versus stress for quartz (dashed line) corresponds to a higher stress sensitivity (as for rocks of Figure 12a). This result suggests that the contrasting stress sensitivity observed for glass and rocks may be explained by the elementary process of crack propagation. If the elementary surface involved in crack propagation is minimum, the stress sensitivity is predicted to be minimum. The above discussion concerning  $s$  parameter suggests that rock behavior is likely to be closer to



quartz behavior than to glass behaviour. In order to check this assumption, the previous model has been used together with the data of *Heap et al.* [2009a] (Figure 13).

Creep experiments on Darley Dale sandstone were performed at ambient temperature, at  $\sigma'_3=30$  MPa by *Heap et al.* [2009a]. Reported constant strain-rate tests provides us with the parameter values:  $E_0=15$  GPa (Young's modulus) and  $\mu=0.34$  (friction coefficient). Crack diameter is assumed to be  $10\ \mu\text{m}$  as in the study of *Guéguen and Fortin* [2013]. From elastic wave velocity measurements at ambient pressure [*Heap et al.*, 2009a], an initial crack density of  $\rho_c=0.68$  can be estimated. At  $\sigma'_3=30$  MPa a reasonable value for the crack density in sandstone is about  $0.4$  [*Fortin et al.*, 2007]. Darley Dale sandstone is mostly made of quartz, thus we use  $s_{\text{quartz}}=4.1\ 10^{-20}\ \text{m}^2$  [*Reuschlé*, 1989; *Meredith*, 1990]. The thermodynamic surface energy between quartz and water was determined by *Reuschlé* [1989] (and then reported by *Meredith* [1990]) as  $\gamma=2.3\ \text{J.m}^{-2}$ . An important parameter however remains unknown, the activation energy,  $E_a$ . The previous model allows to calculate the volumetric strain-rate versus stress relation for the *Heap et al.* [2009a] data, assuming an activation energy in the range of 30 to 70 kJ.mol $^{-1}$  (Figure 13). It is shown that the experimental data are in good agreement with the model if  $E_a=70\ \text{kJ.mol}^{-1}$ . This value is consistent with the direct measurement by *Deuers and Hajash* [1995] on sandstone. These authors obtained a value of  $E_a=73\ \text{kJ.mol}^{-1}$  ( $\pm 13\%$ ). This suggests that glass data and rock data may be consistent, although more data on rocks are needed.

#### 4.5.4. Sensitivity to the glass chemical composition

The previous experimental results are not "universal" but specific to a given boro-silicate glass sample. This glass composition is given in Table 4.

D R A F T

October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

Investigating other glasses is required to quantify the sensitivity to chemical composition. Probably Young's modulus and Poisson's ratio would not change very much with the composition. The elastic behavior is expected to not vary and a high mechanical strength is also expected. The activation energy depends certainly on chemical composition. However it is very likely that the crack subcritical propagation law would be the same for all glasses. Thus the overall behavior is expected to be similar to that of the investigated boro-silicate glass.

#### 5. Conclusions

Stress stepping creep tests have been performed on brittle samples of cracked boro-silicate glass in saturated conditions. Secondary creep and tertiary creep have been documented through strain rate versus stress data and AE record between 20° and 70°C. During constant stress steps slow strain is highlighted in glass, and volumetric strain increases. This observation has been interpreted by sub-critical crack propagation. Secondary brittle creep can be reasonably well explained through a model involving wing-crack propagation. A numerical solution allows us to compare data and predictions. Four parameters have a major role: temperature (through an activation energy found to be  $E_a=32\ \text{kJ.mol}^{-1}$ ) and stress (through an elementary surface for crack propagation), fluid nature (through the surface energy) and initial crack network (through the crack density). Tertiary creep has been observed and times to failure ( $\tau$ ) have been determined. The model allows to predict  $\tau$  values from an analytical result. Using reasonable parameters values, predicted  $\tau$  values are close to experimental ones. When compared to minerals and rocks, brittle creep in glass appears to show a lower stress sensitivity. The model shows that this stress sensitivity is controlled by the elementary surface for crack propagation and activation

D R A F T

October 21, 2014, 12:13pm

D R A F T

energy. Brittle creep data on glass and rocks are similar although the stress sensitivity is higher for rocks.

**Acknowledgments.** We gratefully acknowledge our industrial partners AREVA NC and ANDRA for their financial support of this project. The authors thank the CEA-LCMT for fruitful discussion, for managing the whole project and for providing the glass samples. We thank also J. Renner and the second reviewer for their accurate comments and suggestions that contributed greatly to the improvement of this article.

About the Data Policy compliance, we encourage the reader to send an email to the corresponding author (Mallet C., mallet@geologie.ens.fr) if the data are requested.

## References

- Ashby, M., and C. Sammis (1990), The damage mechanics of brittle solids in compression, *Pure and Applied Geophysics*, 133(3), 489–521.
- Atkinson, B. (1984), Subcritical crack growth in geological materials, *Journal of Geophysical Research*, 89(B6), 4077–4114.
- Atkinson, B. K., and P. G. Meredith (1987), The theory of subcritical crack growth with applications to minerals and rocks, *Fracture mechanics of rock*, 2, 111–166.
- Barth, N., D. George, S. Alzi, Y. Rémond, N. Joulaee, M. Khaleel, and F. Bouyer (2013), Simulation of cooling and solidification of three-dimensional bulk borosilicate glass: effect of structural relaxations, *Mechanics of Time-Dependent Materials*, DOI: 10.1007/s11043-013-9213-3.
- Baud, P., and P. Meredith (1997), Damage accumulation during triaxial creep of darley dale sandstone from pore volumetry and acoustic emission, *International Journal of*

*Rock Mechanics and Mining Sciences*, 34(3), 24–e1.

Bhat, H., C. Sammis, and A. Rosakis (2011), The micromechanics of westerley granite at large compressive loads, *Pure and Applied Geophysics*, 168(12), 2184–2198.

Bhat, H., A. Rosakis, and C. Sammis (2012), A micromechanics based constitutive model for brittle failure at high strain rates, *Journal of Applied Mechanics*, 79(3), 1–12.

Brace, W., J. Walsh, and W. Frangos (1968), Permeability of granite under high pressure, *Journal of Geophysical Research*, 73(6), 2225–2236.

Brantut, N., P. Baud, M. Heap, and P. Meredith (2012), Micromechanics of brittle creep in rocks, *Journal of Geophysical Research*, 117(B8), DOI: 10.1029/2012JB009299.

Charles, R. (1958), Static fatigue of glass. i, *Journal of Applied Physics*, 29(11), 1549–1553.

Cornelius, R.R., and P.A. Scott (1993), A material failure relation of accelerating creep as empirical description of damage accumulation, *Rock Mechanics and Rock Engineering*, 26(3), 233–252.

Darot, M., and Y. Gueguen (1986), Slow crack growth in minerals and rocks: Theory and experiments, *Pure and Applied Geophysics*, 124(4), 677–692.

Deshpande, V., and A. Evans (2008), Inelastic deformation and energy dissipation in ceramics: A mechanism-based constitutive model, *Journal of Mechanics and Physics of Solids*, 56, DOI: 10.1016/j.jmps.2008.05.002.

Dewers, T., and A. Hajash (1995), Rate laws for water-assisted compaction and stress-induced water-rock interaction in sandstones, *Journal of Geophysical Research*, 100(B7), 13,093–13,112.



	MALLET ET AL.: SUB-CRITICAL CRACK PROPAGATION IN GLASS	X - 25
470	Divoux, T., H. Gayvallet, and J.-C. Géninard (2008), Creep motion of a granular pile	
471	induced by thermal cycling, <i>Physical review letters</i> , 101(14), 148–303.	
472	Doquet, V., N. Ben Ali, A. Constantinescu, and X. Boutilon (2012), Fracture of a borosil-	
473	icate glass under triaxial tension, <i>Mechanics of Materials</i> .	
474	Dubé, M., V. Doquet, A. Constantinescu, D. George, Y. Rémond, and S. Ahzi (2010),	
475	Modeling of thermal shock-induced damage in a borosilicate glass, <i>Mechanics of Mate-</i>	
476	<i>rials</i> , 42(9), 863–872.	
477	Fortin, J., Y. Guéguen, and A. Schubnel (2007), Effects of pore collapse and grain	
478	crushing on ultrasonic velocities and vp/vs, <i>Journal of geophysical research</i> , 112,	
479	doi:10.1029/2005JB004005.	
480	Fortin, J., S. Stanchits, G. Dresen, and Y. Gueguen (2009), Acoustic emissions monitor-	
481	ing during inelastic deformation of porous sandstone: comparison of three modes of	
482	deformation, <i>Pure and Applied Geophysics</i> , DOI:10.1007/s00024-009-0479-0.	
483	Fortin, J., S. Stanchits, S. Vinciguerra, and Y. Guéguen (2011), Influence of thermal and	
484	mechanical cracks on permeability and elastic wave velocities in a basalt from mt. etna	
485	volcano subjected to elevated pressure, <i>Tectonophysics</i> , 503(1), 60–74.	
486	Freiman, S. (1984), Effects of chemical environments on slow crack growth in glasses and	
487	ceramics, <i>Journal of Geophysical Research: Solid Earth (1978-2012)</i> , 89(B6), 4072–	
488	4076.	
489	Fujii, Y., T. Kiyama, Y. Ishijima, and J. Kodama (1990), Circumferential strain behavior	
490	during creep tests of brittle rocks, <i>International Journal of Rock Mechanics and Mining</i>	
491	<i>Sciences</i> , 36(3), 323–337.	

X - 26	MALLET ET AL.: SUB-CRITICAL CRACK PROPAGATION IN GLASS	
492	Griffith, A. (1921), The phenomena of rupture and flow in solids, <i>Philosophical transac-</i>	
493	<i>tions of the royal society of london. Series A, containing papers of a mathematical or</i>	
494	<i>physical character</i> , 221, 163–198.	
495	Guéguen, Y., and M. Kachanov (2011), Effective elastic properties of cracked rocks -	
496	an overview, in, mechanics of crustal rocks, <i>CISM Courses and Lectures, Volume 533</i> ,	
497	73–125.	
498	Guéguen, Y., and J. Fortin (2013), Elastic envelopes of porous sandstones, <i>Geophysical</i>	
499	<i>Research Letters</i> , 40(14), DOI: 10.1002/grl.50676.	
500	Guéguen, Y., T. Reuschle, and M. Darot (1990), Single-crack behaviour and crack statis-	
501	tics, in, deformation processes in minerals, ceramics and rocks, <i>Unwin Hyman, edited</i>	
502	<i>by D.J. Barber and P.G. Meredith</i> , 48–71.	
503	Heap, M., P. Baud, P. Meredith, A. Bell, and I. Main (2009a), Time-dependent brit-	
504	tle creep in darley dale sandstone, <i>Journal of Geophysical Research</i> , 114(B7), DOI:	
505	10.1029/2008JB006212.	
506	Heap, M., P. Baud, and P. Meredith (2009b), Influence of temperature on brittle creep in	
507	sandstones, <i>Geophysical Research Letters</i> , 36(19), DOI: 10.1029/2009GL039373.	
508	Heap, M., P. Baud, P. Meredith, S. Vinciguerra, A. Bell, I. Main, et al. (2011), Brittle	
509	creep in basalt and its application to time-dependent volcano deformation, <i>Earth and</i>	
510	<i>Planetary Science Letters</i> , 307(1-2), 71–82.	
511	Johnson, H., and P.C. Paris (1968), Sub-critical flaw growth, <i>Engineering Fracture Me-</i>	
512	<i>chanics</i> , 1(3-45), 71–82.	
513	Lawn, B. (1975), An atomistic model of kinetic crack growth in brittle solids, <i>Journal of</i>	
514	<i>Materials Science</i> , 10(3), 469–480.	

	MALLET ET AL.: SUB-CRITICAL CRACK PROPAGATION IN GLASS	X - 27
535	Lawn, B., and R. Wilshaw (1975), <i>Fracture of brittle solids</i> , Cambridge university press.	
536	Lockner, D. (1993), Room temperature creep in saturated granite, <i>Journal of Geophysical Research: Solid Earth (1978-2012)</i> , 98(B1), 475–487.	
537	Lockner, D., and J. Byerlee (1977), Acoustic emission and creep in rock at high confining pressure and differential stress, <i>Bulletin of the Seismological Society of America</i> , 67(2), 247–258.	
538	Lockner, D. A. (1998), A generalized law for brittle deformation of westerly granite, <i>Journal of Geophysical Research: Solid Earth (1978-2012)</i> , 103(B3), 5107–5123.	
539	Mallet, C., J. Fortin, Y. Guéguen, and F. Bouyer (2013), Effective elastic properties of cracked solids: an experimental investigation, <i>International Journal of Fracture</i> , 181(2), DOI:10.1007/s10704-013-9855-y.	
540	Mallet, C., J. Fortin, Y. Guéguen, and F. Bouyer (2014), Evolution of the crack network in glass samples submitted to brittle creep conditions, <i>International Journal of Fracture</i> (in press).	
541	Meredith, P., and B. Atkinson (1985), Fracture toughness and subcritical crack growth during high-temperature tensile deformation of westerly granite and black gabbro, <i>Physics of the earth and planetary interiors</i> , 39(1), 33–51.	
542	Meredith, P. G. (1990), Fracture and failure of brittle polycrystals: an overview, in <i>Deformation Processes in Minerals, Ceramics and Rocks</i> , 5–47, edited by D.J. barber and P.G. Meredith, Unwin Hyman Ltd.	
543	Nara, Y., M. Takada, D. Mori, H. Owada, T. Yoneda, and K. Kaneko (2010), Subcritical crack growth and long-term strength in rock and cementitious material, <i>International Journal of Fracture</i> , 164(1), 57–71.	

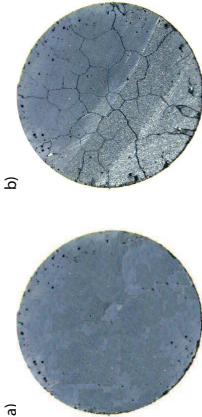
X - 28	MALLET ET AL.: SUB-CRITICAL CRACK PROPAGATION IN GLASS	
538	Orowan, E. (1944), The fatigue of glass under stress, <i>Nature</i> , 154(3906), 341–343.	
539	Ongier-Simonin, A., J. Fortin, Y. Guéguen, A. Schubnel, and F. Bouyer (2010), Cracks in glass under triaxial conditions, <i>International Journal of Engineering Science</i> , 49, 105–121.	
540	Ongier-Simonin, A., Y. Guéguen, J. Fortin, A. Schubnel, and F. Bouyer (2011), Permeability and elastic properties of cracked glass under pressure, <i>Journal of Geophysical Research</i> , 116, DOI:10.1029/2010JB008077.	
541	Paterson, M. S., and T.-f. Wong (2005), <i>Experimental rock deformation-the brittle field</i> , Springer Verlag.	
542	Reuschlé, T. (1989), Les fluides et l'évolution des propriétés mécaniques des roches, Ph.D. thesis, Strasbourg University.	
543	Rice, J., and G. Rosengren (1968), Plane strain deformation near a crack tip in a power-law hardening material, <i>Journal of the Mechanics and Physics of Solids</i> , 16(1), 1–12.	
544	Rudnicki, J. W., and J. Rice (1975), Conditions for the localization of deformation in pressure-sensitive dilatant materials, <i>Journal of the Mechanics and Physics of Solids</i> , 23(6), 371–394.	
545	Schubnel, A., B. Thompson, J. Fortin, Y. Guéguen, and R. Young (2007), Fluid-induced rupture experiment on fontainebleau sandstone: Premonitory activity, rupture propagation, and aftershocks, <i>Geophysical Research Letters</i> , 34 DOI:10.1029/2007GL031076.	
546	Thompson, B., R. Young, and D. Lockner (2005), Observations of premonitory acoustic emission and slip nucleation during a stick slip experiment in smooth faulted westerly granite, <i>Geophysical research letters</i> , 32, DOI: 10.1029/2005GL022750.	



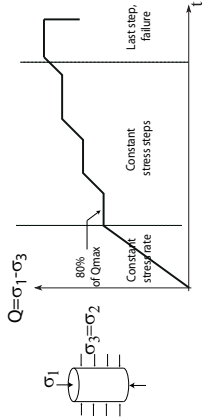
**Table 4.** Major elements composition (in mass) of the borosilicate glass samples. The other

elements have a percentage less than 1%.

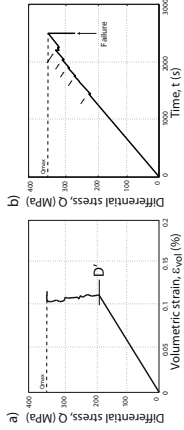
Element glass composition (%)	
Si	43
B	13
Na	9
Al	5
Ca	4
Nd	4
Zr	3
Zn	3
Fe	3
Li	2



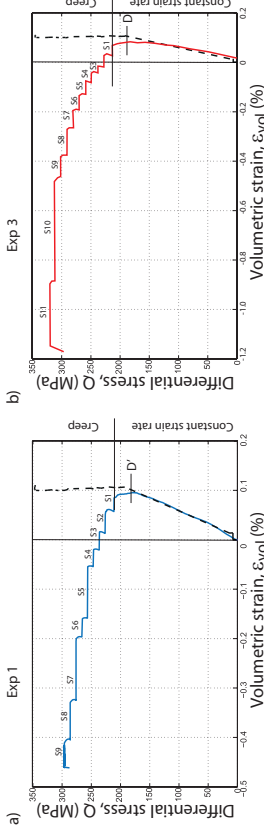
**Figure 1.** Photographic image of a) an uncracked glass sample and b) a cracked glass sample.



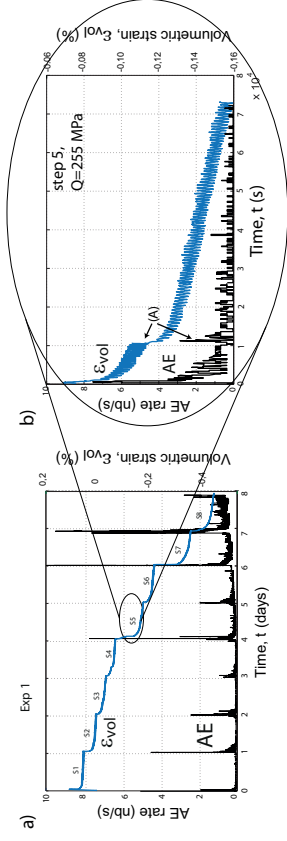
**Figure 2.** Experimental protocol for stress-stepping brittle creep tests.



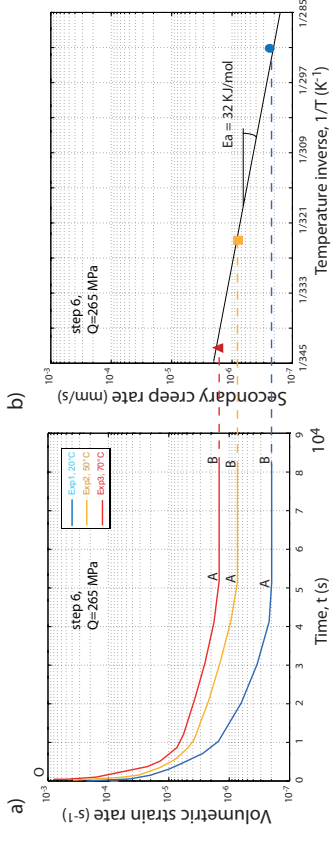
**Figure 3.** Preliminary constant strain rate tests results. a) Volumetric strain versus differential stress. b) Differential stress versus time. Before the failure marked by a rapid stress drop, some foreshocks are observed (noted by an arrow).



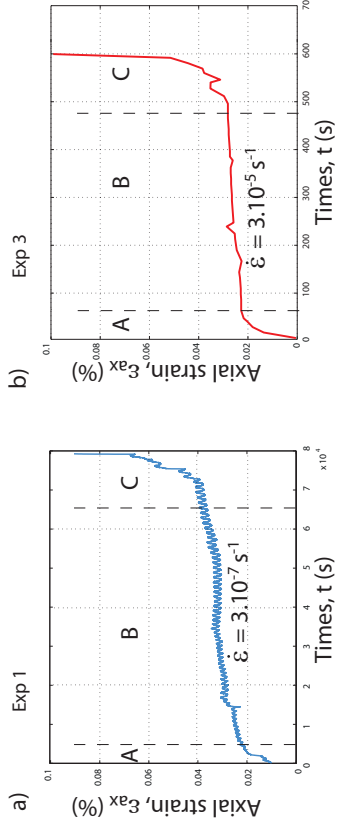
**Figure 4.** Successive stress steps results for two experiments (a: Exp 1 and b: Exp 3). Volumetric strain is represented versus differential stress. Each successive step is noted by  $S_i$ . For reference, we plotted with dashed lines the results obtained for Exp 0 from Figure 3a. The first part of the loading corresponds to constant strain rate deformation. Creep test starts at  $S_1$ .



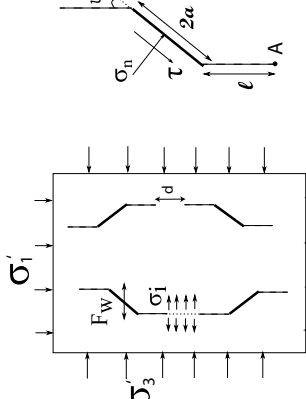
**Figure 5.** Observation of the Acoustic Emission (AE) rate during the volumetric strain increase for the Exp 1. a) Results from the complete experiment in water saturated condition (cumulative volumetric strain in blue line). AE rate (black line) is observed to become more important close to the end of the experiment. b) Zoom of Figure a). Strain increases slowly and a non-zero small AE is present. Strain jumps and AE bursts (A) are also observed.



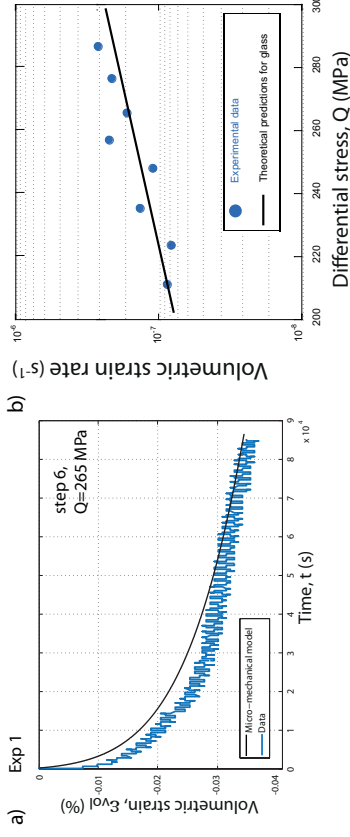
**Figure 6.** a) Volumetric creep rate at 80% of  $Q_{max}$  for a typical step at  $Q=265$  MPa, for three different temperatures (Exp 1 at 20°C: blue circles, Exp 2 at 50°C: red squares, and Exp 3 at 70°C: orange triangles) in water saturated conditions. b) Secondary creep rate (estimated on the AB segment) in logarithmic scale versus temperature. The slope gives the activation energy:  $E_a=32$  kJ.mol<sup>-1</sup>.



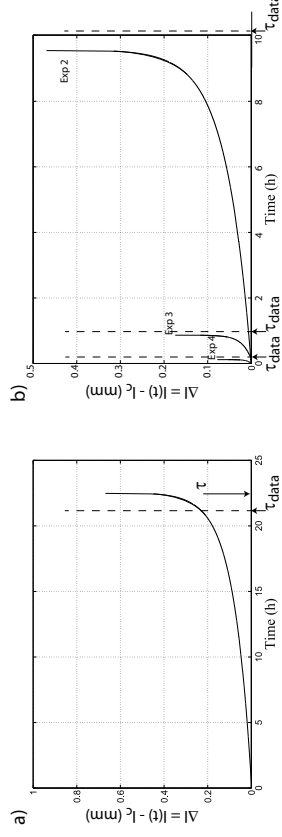
**Figure 7.** Tertiary creep results for two experiments (a: Exp 1 and b: Exp 3). Axial strain is represented versus time. Curves are labelled by the strain rate of secondary phase.



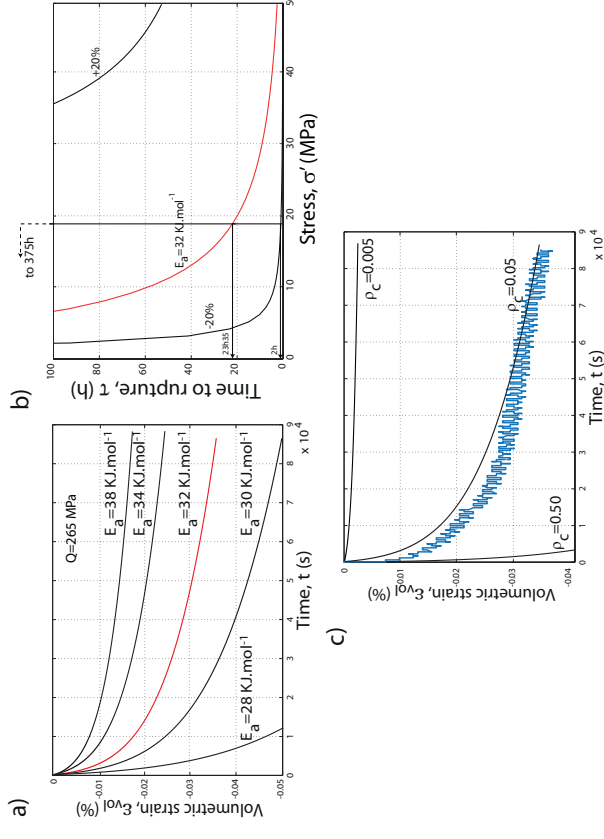
**Figure 8.** Geometry of the crack network used for the stress-intensity factor,  $K_I$ , calculation at a crack tip A.



**Figure 9.** Comparison of secondary creep data with predictions for Exp 1. a) Volumetric strain data (blue curve) compared to model predictions (black line) for a typical stress step (the sixth one at  $Q=265$  MPa). b) Volumetric strain-rate (in logarithmic scale) during secondary creep versus differential stress. Experimental data are reported for each stress step with blue dots. The slope is about  $3.2 \cdot 10^{-9}$  (s MPa) $^{-1}$ . Theoretical strain-rate prediction (black line) gives a slope of  $3.0 \cdot 10^{-9}$  s $^{-1}$ /MPa.



**Figure 10.** Time to rupture predictions and experimental results. a) For Exp 1. b) For Exp 2, 3 and 4.



**Figure 11.** Parameter sensitivity. a) Predicted volumetric strain versus time for a step performed at  $Q=265$  MPa (as in Figure 9a) for different activation energy values :  $28 < E_a < 38$  kJ.mol $^{-1}$ . b) Time to rupture for 3 activation energies. c) Effect of the crack density,  $\rho_c$ , for a typical step at  $Q=265$  MPa (comparison between the initial crack density,  $\rho_c = 0.05$ , and values for  $10\rho_c$  and  $0.1\rho_c$ ).

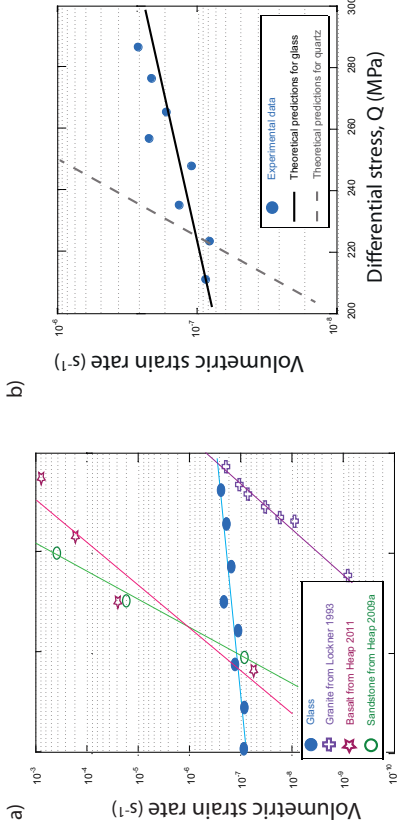


Figure 12. Comparison of glass to natural rock. a) Experimental comparison between

glass (blue dots) and basalt (pink stars), granite (purple crosses) and sandstone (green circles). Volumetric strain-rate is represented versus normalized differential stress. b) Theoretical strain-rate calculation for glass and quartz.

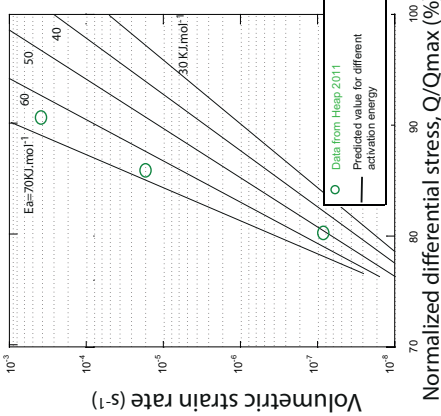


Figure 13. Volumetric creep strain-rate for Darley Dale sandstone extracted from the work of Heap *et al.* [2009a]. In addition calculated volumetric strain-rate are given for an activation energy in the range of 30 to 70 kJ mol<sup>-1</sup>. An activation energy of 70 kJ mol<sup>-1</sup> seems to closely match the data.



# Evolution of the crack network in glass samples submitted to brittle creep conditions

Céline Mallet · Jérôme Fortin · Yves Gueguen ·  
Frédéric Bouyer

Received: date / Accepted: date

**Abstract** A crack network is introduced in glass by quenching heated samples. The sharp variation of temperature at the sample boundaries leads to tensile stresses that nucleate cracks. Then, they propagate in the entire sample. Quenching has been performed at 100°C, 200°C and 300°C. Cracks have been imaged with a scanning electron microscope. A transverse isotropic crack network is observed. Crack length and orientation have been measured. Obtained crack density has been compared to that inferred from elastic wave velocity measurements using effective medium theory. Cracked samples have been then submitted to creep tests. Two samples have been recovered, one before its failure and another after. Our observations show that vertical crack propagation takes place during brittle creep and that tertiary creep leads to a localized failure in a shear plane. The damaged and post-mortem microstructural networks have been documented.

**Keywords** Crack density · Damaged material · Crack network · Glass

## 1 Introduction

The interest of studying cracks in glass has been strong from the early beginning of fracture mechanical studies [Griffith (1921)]. Indeed, glass has a perfectly homogeneous and amorphous structure without porosity. Cracks are really easy to observe in this kind of material. In this study we used boro-silicate glass samples. Because of their manufacturing, some air bubbles are trapped in the glass matrix but the porosity is very small <1%, and not connected. Cracks are introduced by quenching heated samples [Ougier-Simonin et al (2011)]. The resulting crack network for a particular temperature (300°C) has been previously investigated in this material [Mallet et al (2013)]. In this previous study, the authors demonstrate that it is possible to directly measure the crack density from microstructural investigation in glass samples. They found for a 300°C thermal treatment a global crack density of 0.05. They also observed an homogeneous crack network with a Transverse Isotropic (TI) symmetry.

C. Mallet  
Laboratoire de Géologie, Ecole Normale Supérieure, CNRS, UMR 8538, Paris, France  
Tel.: +033-144532209  
E-mail: mallet@geologie.ens.fr

The present work focuses on the evolution of the crack network with damage. Firstly, three crack networks are documented. They are introduced at different temperatures. Then, crack network of deformed samples are observed. Indeed, glass can deform under constant applied stress due to sub-critical crack propagation. This is the “brittle creep” regime [Atkinson (1984, 1987), Paterson (2005)]. In the second part of this study we observe the evolution of the crack network submitted to creep tests. The evolution of the entire crack network has been documented from observations after and before failure using SEM (Scanning Electron Microscopy). Two samples are investigated. The first one was recovered after secondary brittle creep damage and the second one after its failure in tertiary creep. During both creep tests, volumetric strain and Acoustic Emissions (AE) have been recorded in order to follow the sample damage and account for the crack propagation. Elastic wave velocities have been measured before recovering the samples to infer crack densities [Walsh (1965a,b)].

## 2 Methodology

### 2.1 Samples and thermal cracking

The original boro-silicate glass samples are produced in ideal conditions of slow cooling that prevents any crack formation. The reproducible method was developed by the French Atomic Energy Commission (CEA) laboratory (Marcoule). The glass is homogeneous and the porosity is about 1% due to a few isolated air bubbles trapped in the glass matrix (this porosity is not connected). We used cylindrical specimens of 80 mm-length and 40 mm-diameter. Cracks were introduced by thermal shocks [Ougier-Simonin et al (2011)]: samples were heated in an oven at 1°C/min up to  $T_{max}$ . They were kept at this constant temperature during 2 hours. Then, samples were quenched in less than 5 s in water at room temperature (Figure 1a). Three temperatures,  $T_{max}$ , have been investigated: 100°C, 200°C and 300°C. Higher temperatures result in sample failure [Ougier-Simonin et al (2010)].

As a TI symmetry is expected for each  $T_{max}$  [Mallet et al (2013)], four thin sections are cut in each thermally cracked samples in order to document the crack network, as in the schematic view of Figure 1b: there are three horizontal sections. In these sections an isotropic crack distribution is expected to be in good agreement with the TI symmetry definition. The fourth section is cut in the lower half cylinder. It is a vertical section. Crack microstructure were imaged from the four thin sections, using a Scanning Electron Microscope (SEM). Images were obtained with a magnification of  $\times 60$ . The mosaic picture of the entire surface was reconstituted by pasting images end to end.

### 2.2 Brittle creep experiments and sub-critical crack propagation protocol

Brittle creep in glass results of sub-critical crack propagation [Lawn (1975), Ashby and Sammis (1990), Deshpande and Evans (2008) Bhat et al (2011)]. The brittle creep experiments were performed using a conventional triaxial apparatus (axially symmetric:  $\sigma_2 = \sigma_3$ ) installed at the Laboratoire de Géologie in the Ecole Normale Supérieure in Paris. A more detailed description of this apparatus can be found in previous studies [Ougier et al (2010), Brantut et al (2011)]. The confining pressure,  $P_c$ , is provided by a pump system using oil and can reach 100 MPa. The pore pressure,  $P_p$ , is fixed at 15 MPa. The sample is isolated from oil by a neoprene jacket. The pore pressure,  $P_p$ , controlled by two independent pumps



related to the top and the bottom of the sample, can reach 100 MPa. Pore fluid is a commercial mineral water in this study (to avoid any chemical exchange between glass and pore fluid), with a pore fluid pressure of 5 MPa. Thus the effective confining pressure is 10 MPa. The axial stress,  $\sigma_1$ , applied by a piston, can be increased up to 700 MPa for a 40 mm-diameter sample. During our creep tests we control the differential stress,  $Q = \sigma_1 - \sigma_3$ .

Volumetric strain was recorded during the brittle creep tests with strain gages. Also, 16 piezoelectric sensors are glued directly on the surface of the sample. In a passive mode, these sensors can record the Acoustic Emissions (AE) that take place in the sample. The AE are amplified at 40 dB and discretely recorded (with a maximum record of 12 AE/s) [Thompson et al (2005), Schubnel et al (2007), Fortin et al (2009)]. In an active mode, these sensors allow to obtain ultrasonic elastic wave velocities. Indeed, alternately sensors sent a pulse and the other ones recorded the transmitted wave.

The creep tests are performed following the protocol of stress-stepping (similar to that of Heap et al (2009a, 2009b)). Hydrostatic pressure was first increased up to 15 MPa. Then, pore pressure was increased up to 5 MPa (water) and was kept constant during the experiment. In order to get a full saturation, the sample was maintained in these conditions for two days. Then, the axial stress path (Figure 2) can be described in three stages. The first stage corresponds to an increase of the differential stress up to 80% of  $Q_{max}$  at a constant stress rate of 4 MPa/min. The maximum differential stress,  $Q_{max}$ , is known from previous constant strain rate experiments performed on identical thermally cracked glass samples [Ougier-Simonin et al (2011)]. When the loading reaches 80% of  $Q_{max}$ , the axial stress is maintained constant and the sample is allowed to deform under constant stress. This is the second stage and it corresponds to primary and secondary creep. The differential stress was kept constant for 24 hours and then increased by 10 MPa. As a consequence, this second stage is the result of several steps of constant stress of 24h each. This was repeated until failure occurred. The third stage is the last step when failure occurs in tertiary creep.

The mechanical behavior has been reported in [Mallet et al, JGR, submitted]. This presented work is focused on crack microstructures: initial samples, recovered sample (at 95% of  $Q_{max}$ ) and post-mortem sample.

## 2.3 Crack density definition and measurement

Crack density is a damage parameter introduced by Bristow (1960), to quantify the effect of cracks on elastic properties. It is defined as the ratio of the sum of all the cubed crack radii versus the volume. Its value is  $\rho_c = \sum a_i^3 / V_T$ , where  $a_i$  is the radius of the  $i^{th}$  crack and  $V_T$  is the total volume sample. Kachanov (1980) introduced the crack density tensor,  $\alpha$  described by its principal components :  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  and  $\alpha_3$  that represent the crack density in the three orthogonal planes. In our case, a TI symmetry is assumed. It corresponds to  $\alpha_2 = \alpha_3$ .

From microstructural investigations, the two oriented crack densities ( $\alpha_1$  and  $\alpha_3$ ) can be obtained. All cracks radii are measured (they are assumed to be the half of the viewed crack length). Assuming a TI symmetry,  $\alpha_1$  and  $\alpha_3$  can be obtained from planar sections. Indeed, all of the horizontal cracks are intersected by a vertical section. On this section, the crack density of the horizontal cracks, represents the global horizontal crack density of the complete sample:  $\alpha_3$ . With the same consideration, all vertical cracks are intersected by horizontal sections. Thus the global crack density on these sections is the global vertical crack density of the complete sample:  $\alpha_1$ .

From elastic wave velocity measurements, crack densities can also be obtained. Elastic wave velocities of cracked samples have been measured in the triaxial cell, before and during the creep experiments, with the 16 ultrasonic piezoelectric sensors [Birch (1960), Yin (1992), Schubnel et al (2006)]. These sensors were glued at different orientations to get the velocity in different orientations [Fortin et al (2006)]. This set of sensors allow to measure five velocities:  $V_P(90^\circ)$ ,  $V_P(45^\circ)$ ,  $V_P(0^\circ)$ ,  $V_{SV}(90^\circ)$  and  $V_{SH}(90^\circ)$ . The angles are defined considering the axial axis of the cylinder as the  $0^\circ$ . Then, the effective compliance components are derived from the velocities. Assuming a TI symmetry, only 5 independent elastic constants have to be considered [Guéguen and Kachanov (2011)]. Compliance components  $C_{ijkl}$  are related to crack density through effective medium theory and the Non-Interaction Approximation (NIA) [Kachanov (1980), Guéguen and Kachanov (2011)]. Finally the effective compliance components derived from the velocities are inverted in terms of crack density component,  $\alpha_1$  and  $\alpha_3$ .

## 3 Initial crack network

### 3.1 Imaging cracks in glass

Glass has an homogeneous structure, ideal for crack observations. SEM pictures show clearly cracks in glass (Figure 3a). These pictures are taken in a sample thermally cracked with  $T_{max}=300^\circ\text{C}$ , on the vertical section (section 4 of Figure 1b). In these SEM images, two kinds of heterogeneity are seen: bubbles (black dots) and cracks (thin lines). The bubbles can be filtered out. Then, with image processing (contrast treatment), cracks appear clearly, and a vectorial picture is obtained. The crack network can be imaged over the entire section. It is possible to measure, count and classify the cracks with respect to their orientation. A crack is assumed to be a single crack from one intersection (A dot on Figure 3a) to another (B dot on Figure 3a). The crack radius is the half of the viewed length (AB segment). Note that most cracks are linear, however some of them deviate from a straight line. We will assume in the following that if the deviation is smaller than a  $10^\circ$ -angle, the two branches are considered to be a single crack.

The orientation of cracks is defined on Figure 3b. If the considered section is horizontal, the crack orientation is described with respect to the  $\theta$  angle. If the section is vertical, it is described using  $\varphi$  angle (Figure 3a). The crack normal,  $n$ , is defined by angles  $\varphi$ ,  $\theta$  (Figure 3b)

### 3.2 Microstructural observations: crack network induced by thermal shocks at 100, 200, 300°C

The SEM mosaic of each of the four planar section of Figure 1b is shown on Figures 4 to 6. The crack network obtained after SEM image processing is shown in the central column. The corresponding projected crack density is shown in the last column. This last quantity corresponds to the total crack length measured on the image, per angle range of  $45^\circ$  (the crack plane is considered, not its normal). As an example, the value at the angle  $360^\circ/0^\circ$  on section 4 represents the density of vertical cracks from vertical sections. On each figure, the three first subplots are the results for the three horizontal planes from the top to the middle of the sample, and the last subplot is for the vertical section taken in the lower half cylinder.

Note that this section is doubled after image processing assuming a symmetry plane at the center of the sample (in order to get the complete vertical section).

The crack network microstructure of sample cracked at  $T_{max}=100^{\circ}\text{C}$ , is represented on Figure 4. The crack network shape can be described from the B column results. Boundaries effects are seen on section 1. Indeed, on this plane, cracks are more numerous and smaller than on sections 2 and 3. On the vertical section (4) there are a few long vertical cracks. There is no crack in the sample core. Looking at the oriented crack density (C column), we can see that it is very low ( $<0.002$ ). Crack density decreases inside of the sample. On the vertical section, mostly vertical cracks are observed.

At  $T_{max}=200^{\circ}\text{C}$ , the crack network is different (Figure 5). Indeed crack density increases. The boundaries effects are more visible at this temperature: cracks are more numerous and smaller on section 1. An isotropic distribution of cracks is observed on the three radial planes. Crack density has the same value for section 2 and 3 (around 0.02) but is more important in section 1. On the vertical section (4) the long vertical cracks are very well observed. The crack density values are in good agreement with this observation.

Figure 6 represents the crack network of the sample cracked at  $T_{max}=300^{\circ}\text{C}$ . The same boundaries effects are still present. However, on section 1, an hexagonal/pentagonal pattern is observed for the first section. Its symmetry is closed to the T1 one. The vertical section shows some long vertical cracks. The oriented crack densities show that, from section 1 to 3, the crack density distribution is isotropic and has the same value. It indicates that in this last case, the crack network has a regular distribution up to the sample core. On the vertical section the anisotropy is clearly seen with the vertical crack predominance.

Considering that the vertical crack density of the whole sample is the average value of the crack density obtained from sections 1 to 3, and that the horizontal crack density is the value obtained with horizontal cracks present on section 4, Table 1 summarizes the results. Comparing the microstructural results of the three samples together with the crack density values, two points appear clearly. First some boundary effects are present and the crack network geometry is the same for the three samples. Indeed, the crack network of the first horizontal thin section (close to the cylinder top) is composed of smaller and more numerous cracks. On the radial sections an isotropic crack distribution is observed. The second point is that the average global crack density increases from a  $100^{\circ}\text{C}$  thermal shock to a  $300^{\circ}\text{C}$  thermal shock. Moreover, cracks do not propagate up to the sample core for a thermal shock of  $100^{\circ}\text{C}$  (Figure 4), but they do propagate more deeply into the cylinder for shocks of  $200^{\circ}\text{C}$  and  $300^{\circ}\text{C}$ .

These two points allow to confirm the description of the crack network creation proposed by Mallet et al (2013). Tensile stresses (due to the sharp decrease of temperature at the cylinder boundaries) are responsible for crack nucleation. Then, with time, temperature decreases progressively up to the sample core and cracks propagate. Because only the  $300^{\circ}\text{C}$  thermal shock, results in a constant crack density value through the entire sample, we will only consider this case for the following experiments.

#### 4 Crack network evolution resulting from brittle creep experiments

##### 4.1 Crack network of a thermally cracked sample deformed under secondary creep

The first considered creep test was performed with a glass sample thermally shocked at  $300^{\circ}\text{C}$ . This sample was submitted to sub-critical crack propagation through brittle creep

test. During this experiment, the confining pressure and the pore pressure are firstly set up (at 15 MPa and 5 MPa, respectively). They will remain constant during the complete experiment. Then, the differential stress is firstly increased up to 225 MPa. Then, after 24 hours, it was increased by 10 MPa. A succession of 10 steps was performed. At the end of the  $10^6$  step, failure in tertiary creep is not observed and the sample is recovered. This stress path is represented by the dashed line on Figure 7a. This Figure shows also, the AE rate and the volumetric evolution during the succession of steps.

Note that for every step, the initial and secondary creep phases are always associated with a high level of AE rate. With the damage increase, the AE rate becomes more important and bursts of AE rate are more frequent. One particular step, at  $Q = 265$  MPa is shown enlarged (Figure 7b) to observe precisely the complete creep behavior during one step. The initial fast strain increase corresponds to primary creep. This is associated with a high level of AE rate (from 5 AE/s down to 1). The initial phase is followed by a second phase where the volumetric strain seems to increase slowly and regularly. This is the secondary creep with a constant strain rate. In this second phase, the AE rate is constant around 1 AE/s. During the creep step, strain jumps can occur resulting in bursts of AE rate. An example of strain jump and AE burst is pointed by an arrow (A). Note that the volumetric strain (Figure 7b) is characterized by very small oscillations of a period  $T=6.10^{-4}$  s. These small oscillations are due to the regulation of the room and the cell temperature ( $\pm 0.5^{\circ}\text{C}$ ). Similar observations were reported in other granular materials [Divoux et al (2008)].

On Figure 7a, two AE bursts are marked with a star. The grey one is on the first step (and it is one of the smallest burst), the black one highlights the most important AE burst (seventh step). These two AE events are observed on a logarithmic scale (Figure 7c), that shows the number of aftershocks as a function of time. Both AE events follow a power law (Omori's law), with exponents of -1.07 and -0.76 for the first and the seventh steps, respectively. Finally, a similar observation can be done for each AE event and Figure 7d represents the values of the Omori's exponents for the different stress values. An increasing trend is observed although scattering is important. This increase of the Omori's exponents with damage is similar to what has been reported on natural rocks such as porous sandstone [Ojala et al (2003, 2004)].

The sample was recovered before failure in tertiary creep, after the last creep step shown on Figure 7. The SEM image of the complete vertical section is presented on Figure 8a. Cracks are highlighted by image processing (Figure 8b) and crack density is calculated (Figure 8c). The resulting crack network shows an important vertical crack propagation. Some horizontal cracks are observed. They were present in the initial state. An isotropic crack distribution (Figure 8d) is observed on the radial plane indicating T1 symmetry. From the vertical section, it is possible to obtain the horizontal crack density:  $\alpha_3=0.03$ . The vertical crack density,  $\alpha_1$  could be measured from the radial sections:  $\alpha_1=0.20$ .

##### 4.2 Crack network of a thermally cracked sample after failure in tertiary creep

A second glass sample thermally shocked at  $300^{\circ}\text{C}$  was submitted to sub-critical crack propagation through brittle creep test. The experimental conditions were the same as for the previous one (mineral water saturated condition, confining pressure of 15 MPa). During this experiment, the stress path is the same as previously but the sample failed in tertiary creep. The sample was recovered for microstructural observations. The last creep step is represented on Figure 9. The volumetric strain and the AE rate are plotted. Three characteristic

of a creep response are observed: in primary creep, a deceleration of strain is recorded with a high level of AE rate (at 12 event/s). During secondary creep, the strain rate is almost constant together with an AE rate that has decreased (and is about 1 event/s). During the tertiary creep an acceleration of strain is observed and the AE rate increases up to the failure. Note that during this last creep step, the failure occurs after 45 min.

Microstructural observations of the *post-mortem* cracks have been performed (Figure 10). The *post-mortem* sample presents an oblique shear band where glass is crushed into powder. A thin layer of gouge is formed. Two larger magnification images are shown: one outside the failure zone (Figure 10b) and another from the failure zone (Figure 10c). As in the previous sample, the initial horizontal cracks are still observable. These cracks present a pattern similar to that of the initial crack network (Figure 6, central column, section 4). The failure zone appears to be a completely destroyed zone where glass is reduced into powder. The failure zone is a gouge of a 7 mm-thickness (Figure 10c). Outside the failure zone, cracks are mainly vertical (Figure 10b).

The crack pattern (Figure 10d) allows to get crack density (Figure 10e). From this vertical section, horizontal crack density is measured as,  $\alpha_3=0.044$ . A picture of an half horizontal section (on the top of the cylinder) is also shown with its vectorized crack network (Figure 10f). From this section, the vertical crack density is measured as,  $\alpha_1=0.21$ . The crack density is closed to the crack density obtained in the previous case.

## 5 Discussion

### 5.1 Crack radius evolution with damage

On Figure 11 is represented the histogram of crack radius of the initial cracked sample (at 300°C; Figure 11a), the damaged sample (section 4.1, Figure 11b) and the *post-mortem* sample (section 4.2, Figure 11c). From the initial, the damaged and the *post-mortem* samples, the maximal crack radii (around 10 mm) remain constant. The statistical distribution of crack radii does not vary strongly: in the three cases, the mean radius is around 1.8 mm and the median radius is 3 mm. However the number of cracks is different. In the initial sample around 150 cracks are counted whereas 760 cracks are counted in the deformed sample. For the *post-mortem* sample we count almost 700 cracks but this excludes the crushed zone. We observe also that there are no more very small cracks. The distribution approaches an exponentially decreasing law.

The variation of the total crack's number cannot be explained by the nucleation of new cracks. Indeed, the mechanical strength of uncracked glass is very high compared to that of the cracked glass ( $Q_{max}=700$  MPa for uncracked glass and  $Q_{max}=300$  MPa for a cracked sample at the same confining pressure of 15 MPa). Thus, crack nucleation cannot be expected in our creep test conditions. The apparent increase of crack's number might be biased. To explain this observation, two interpretations are possible. The first one is to consider the crack propagation of initial micro-cracks that are not visible from SEM and from ultrasonic velocities. The initial sample could present the same crack number as those observed in the damaged samples, but many are too small to be measured. Probably, these cracks propagate. Thus, they are observed on damaged samples but not on initial sample. Another possible interpretation is that the increase of the crack's number is due to an increase of crack connectivity. Indeed, as cracks propagate, they intersect other cracks, leading to an apparent increase of the number of crack, due to our methodology (Figure 3a). Crack branching and interconnectivity would then explain our observations.

It is however difficult to determine which interpretation is the appropriate one. The second explanation leads to consider that, using our crack length definition, a single crack can split into many, at least formally.

### 5.2 Crack density inferred from elastic wave velocities and from microstructural observation

From the five elastic wave velocity measurements, crack density can be inferred (see the framework of the work of Kachanov (Gréguen and Kachanov (2011))). Velocities are summarized in Table 2. The considered samples are the initial sample thermally cracked at  $T_{min}=300^\circ\text{C}$ , the damage sample (secondary creep) and the *post-mortem* sample (tertiary creep).

For the initial sample, the comparison of the crack densities obtained from a direct and independent measurement (the microstructural observation) are really closed to the one inferred from the elastic wave velocities (Table 3). This good correspondence indicates that at this crack density level (around 0.05), the non interaction approximation is a good one.

For the two damaged samples, the crack density is higher (global crack density of  $\rho_c=0.26$  and 0.30). In this case, it is observed that the elastic wave velocities leads to a different result. The discrepancy is of about 30%. A more reliable interpretation of this discrepancy is to consider that it highlights a threshold from which the non interaction approximation is no more valid. This threshold is consistent with the one determined by the previous study of Gredchka and Kachanov (2006a,c). In this study, the authors determine that beyond a global crack density of 0.14, the non interaction method is no more exact.

## 6 Conclusion

Using SEM, cracks in quenched glass have been imaged and crack densities measured. The initial crack density is closed to 0.05 for a thermal chock at 300°C. Cracks samples have been submitted to brittle creep conditions. The experimental results show that brittle creep results from sub-critical crack growth. At constant stress, crack propagates up to a point where crack interactions take place and failure develops along an inclined shear plane. Failure takes place in tertiary creep and crack density increases up to 0.3.

From elastic wave velocity measurements, crack densities have been calculated through the non interactive approximation. At small crack density (around 0.05), this approximation is excellent. However, there is a threshold (crack density of about 0.3) beyond which the non-interaction approximation overestimates the crack density by 30%.

**Table 1** Crack densities from microstructural observations:  $\alpha_1$  (vertical cracks),  $\alpha_3$  (horizontal cracks) and global crack density,  $\rho_c$  ( $= \alpha_1 + 2\alpha_3$ ), for the initial samples cracked with three different temperatures.

Temperature	100°C	200°C	300°C
$\alpha_1$	0.0056	0.021	0.041
$\alpha_3$	0.0007	0.0016	0.0032
$\rho_c$	0.007	0.024	0.047

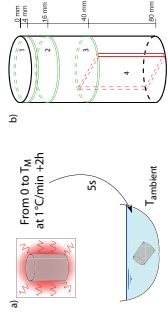
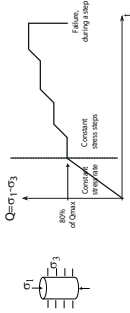
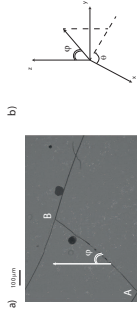
**Table 2** Elastic wave velocities. Measurements were performed for the initial sample thermally cracked at 300°C and the two damaged samples. Crack densities were inferred from these measurements.

	$V_L(90^\circ)$	$V_L(45^\circ)$	$V_L(0^\circ)$	$V_{SL}(90^\circ)$	$V_{SL}(90^\circ)$
Initial sample [Mallet et al (2013)]	6100	5950	5750	2980	2900
Damaged sample (secondary creep)	5900	5250	4950	2150	1950
Post-mortem sample (tertiary creep)	6000	5310	4830	2100	1950

**Table 3** Comparison of the crack density values calculated from microstructural observation and values inferred from elastic wave velocity results:  $\alpha_1$  (vertical cracks),  $\alpha_3$  (horizontal cracks) and global crack density,  $\rho_c$ , for the recovered samples.

	Initial sample with $T_{min}=500^\circ\text{C}$			Initial sample with secondary creep			Initial sample with tertiary creep		
	SEM	Velocity	error	SEM	Velocity	error	SEM	Velocity	error
$\alpha_1$	0.041	0.038	7%	0.20	0.25	25%	0.21	0.27	28%
$\alpha_3$	0.0032	0.0034	6%	0.03	0.038	27%	0.044	0.06	36%
$\rho_c$	0.047	0.045	4%	0.26	0.33	27%	0.30	0.39	30%

**Acknowledgements** We gratefully acknowledge our industrial partners AREVA NC and ANDRA for their financial support of this project. The authors thank the CEA-LCLT for fruitful discussion, for managing the whole project and for providing the glass samples.

**Fig. 1** a) Schematic view of the thermal treatment that introduces the initial crack network. b) Four thin sections were cut in cracked glass samples in order to investigate the initial crack network.**Fig. 2** Creep experiment protocol.**Fig. 3** a) SEM image of cracks introduced by a thermal shock at 300°C (vertical view). A crack is considered to be a single crack from one intersection (A) to another (B). Its radius is the half of segment AB. Its orientation is described on Figure b); crack normal is defined by two angles:  $\theta$  and  $\phi$ .

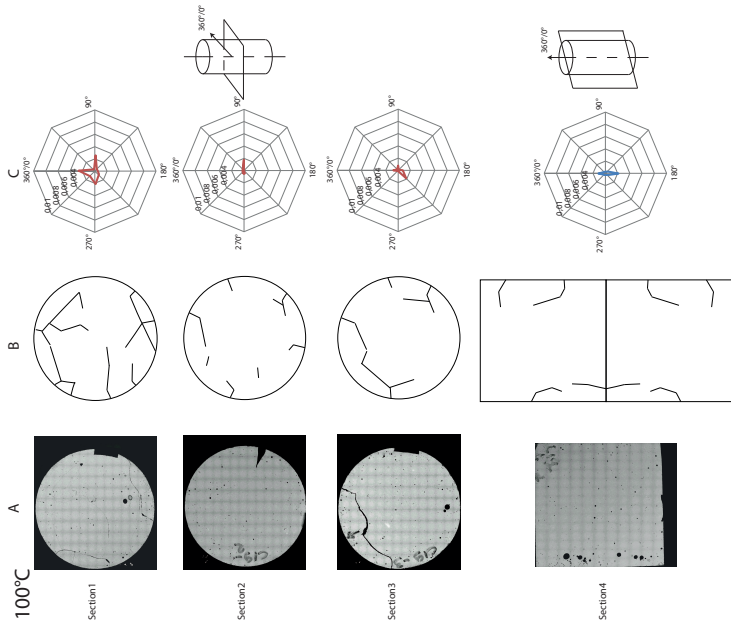


Fig. 4 Initial crack network for a thermal shock of 100°C. The first column is the mosaic sections of each thin section of Figure 1b. The second column is the vectorized crack network. The third column represents for each crack network the corresponding oriented crack density.

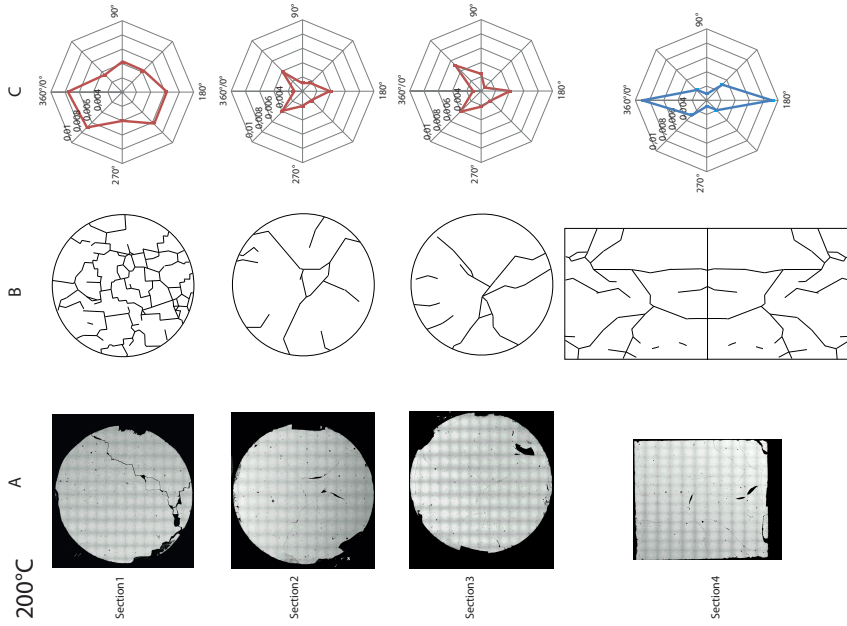
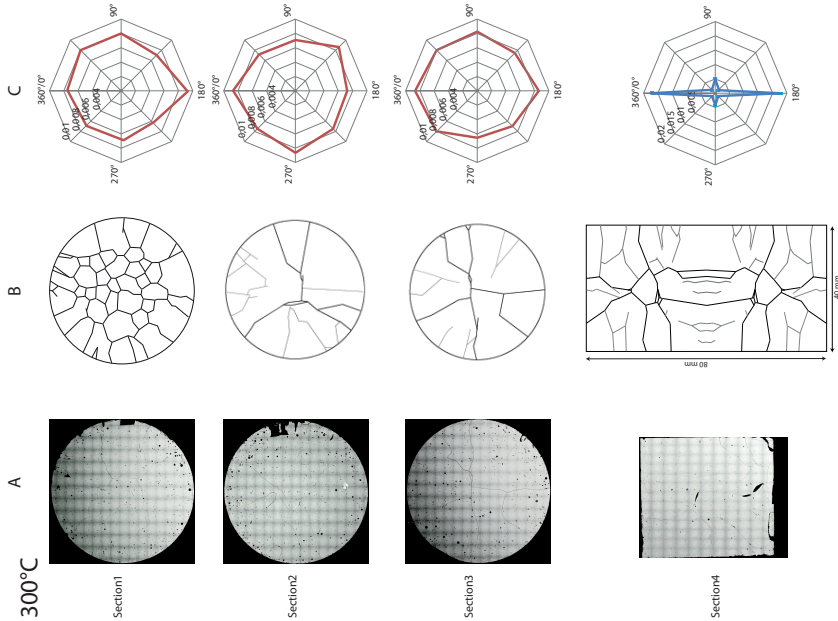
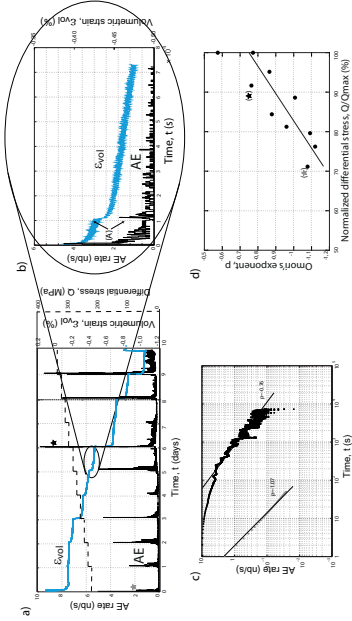


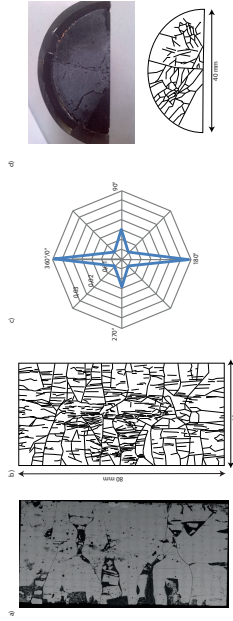
Fig. 5 Initial crack network for a thermal shock of 200°C. The first column is the mosaic sections of each thin section of Figure 1b. The second column is the vectorized crack network. The third column represents for each crack network the corresponding oriented crack density.



**Fig. 6** Initial crack network for a thermal shock of 300°C. The first column is the mosaic sections of each thin section of Figure 1b. The second column is the vectorized crack network. The third column represents for each crack network the corresponding oriented crack density. (modified from Mallet et al., 2013)



**Fig. 7** Observation of the Acoustic Emission (AE) rate and volumetric strain increase during the creep test. Confining pressure and pore pressure are fixed to 15 and 5 MPa, respectively. a) Results from the complete experiment (differential stress in dashed line and cumulative volumetric strain in blue line). AE rate (black line) is observed to become more important close to the end of the experiment. b) Zoom of Figure a). Strain increases slowly and a non-zero small AE rate is present. Strain jumps and AE bursts (A) are also observed. c) Two bursts of AE noted with a star on Figure a) are reported using a logarithmic scale. Aftershocks follow a power law function with Omori's exponents of -1.09 and -0.79 for step 1 and 7, respectively. d) Omori's exponents for all events reported versus normalized differential stress.



**Fig. 8** Sample recovered before its failure. a) SEM picture of the complete vertical section. b) Vectorized crack network of the entire vertical section. c) Corresponding oriented crack density. d) Picture of the horizontal half section and corresponding oriented crack pattern.



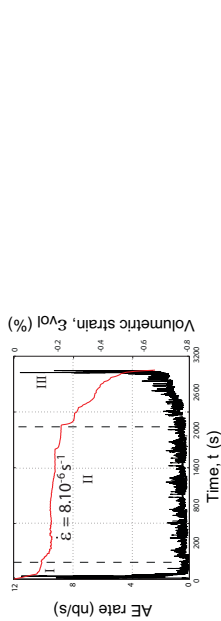


Fig. 9 Volumetric strain and AE rate versus time during the last creep step. Primary, secondary and tertiary creep are separated by dashed lines.

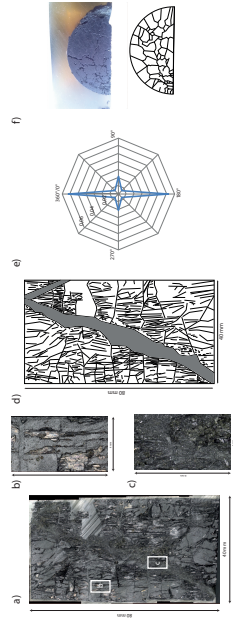


Fig. 10 *Post-mortem* sample (after failure in tertiary creep). a) SEM picture of the complete vertical section. b) and c) Zoomed views of cracks outside and inside of the failure zone. d) Vectorized crack network of the entire vertical section. e) Corresponding oriented crack density. f) Picture of the horizontal half section and corresponding crack pattern

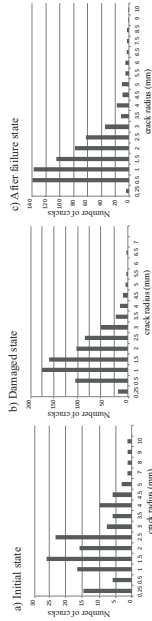


Fig. 11 Crack radius histogram for a) the initial state (sample thermally shocked at 300°C), b) the sample submitted to creep and recovered before failure, and c) the *post-mortem* sample after failure in tertiary creep.

## References

- [Ashby and Summris (1990)] Ashby M, Summris C (1990) The damage mechanics of brittle solids in compression. *Pure and Applied Geophysics* 133(3):489–521
- [Atkinson (1984)] Atkinson B (1984) Subcritical crack growth in geological materials. *Journal of Geophysical Research* 89(B6):4077–4114
- [Atkinson and Meredith (1987)] Atkinson BK, Meredith PG (1987) The theory of subcritical crack growth with applications to minerals and rocks. *Fracture mechanics of rock* 2:111–166
- [Bhat et al (2011)] Bhat H, Summris C, Rosakis A (2011) The micromechanics of westerley granite at large compressive loads. *Pure and Applied Geophysics* 168(12):2184–2198
- [Bhat et al (2012)] Bhat H, Rosakis A, Summris C (2012) A micromechanics based constitutive model for brittle failure at high strain rates. *Journal of Applied Mechanics* 79(3):1–12
- [Birch (1960)] Birch F (1960) The velocity of compressional waves in rocks to 10 kbars, part 1. *Journal of Applied Mechanics* 65:1083–1102
- [Brannat et al (2011)] Brannat N, Schubnel A, Gueguen Y (2011) Damage and rupture dynamics at the brittle-ductile transition: the case of gypsum. *Journal of Geophysical Research* 116 (B01404). DOI: 10.1029/2010JB007675
- [Bristow (1960)] Bristow J (1960) Microcracks, and the static and dynamic elastic constants of annealed and heavily cold-worked metals. *British Journal of Applied Physics* 11, no 2p. 81
- [Deshpande and Evans (2008)] Deshpande V, Evans A (2008) Inelastic deformation and energy dissipation in ceramics: A mechanism-based constitutive model. *Journal of Mechanics and Physics of Solids* 56; DOI: 10.1016/j.jmps.2008.05.002
- [Divoux et al (2008)] Divoux T, Gayvallet H, Générard JC (2008) Creep motion of a granular pile induced by thermal cycling. *Physical review letters* 101(14):148,303
- [Fortin et al (2006)] Fortin J, Stanchis S, Dresen G, Gueguen Y (2006) Acoustic emission and velocities associated with the formation of compaction bands in sandstone. *Journal of Geophysical Research* 111(B10): DOI:10.1029/2005JB003854
- [Fortin et al (2009)] Fortin J, Stanchis S, Dresen G, Gueguen Y (2009) Acoustic emissions monitoring during inelastic deformation of porous sandstone: comparison of three modes of deformation. *Pure and Applied Geophysics*; DOI:10.1007/s00400-009-0479-0
- [Greechka and Kachanov (2006a)] Greechka V, Kachanov K (2006) Effective elasticity of rocks with closely spaced and intersecting cracks. *Geophysics* 71 (3), D85–D91
- [Greechka and Kachanov (2006c)] Greechka V, Kachanov K (2006) Effective elasticity of fractured rocks: A snapshot of the work in progress. *Geophysics* 71 (6), W45–W58
- [Griffith (1921)] Griffith A. (1921) The phenomena of rupture and flow in solids. *Philosophical transactions of the royal society of London Series A, containing papers of a mathematical or physical character* 221:163–198
- [Guéguen and Kachanov (2011)] Guéguen Y, Kachanov M (2011) Effective elastic properties of cracked rocks - an overview, in: *mechanics of crustal rocks, CISM Courses and Lectures Volume 533*:73–125
- [Heap et al (2009a)] Heap M, Baud P, Meredith P (2009a) Influence of temperature on brittle creep in sandstones. *Geophysical Research Letters* 36(19): DOI: 10.1029/2009GL039373
- [Heap et al (2009b)] Heap M, Baud P, Meredith P, Bell A, Main I (2009b) Time-dependent brittle creep in darkly deformed sandstone. *Journal of Geophysical Research* 114(B7): DOI: 10.1029/2008JB006312
- [Heap et al (2011)] Heap M, Baud P, Meredith P, Vinciguerra S, Bell A, Main I, et al (2011) Brittle creep in basalt and its application to time-dependent volcanic deformation. *Earth and Planetary Science Letters* 307(1-2):71–82
- [Kachanov (1980)] Kachanov M (1980) Continuum model of medium with cracks. *Journal of the engineering mechanics division* 106:1039–1051
- [Lawn and Wilshaw (1975)] Lawn, B.R., Wilshaw, R. (1975) *Fracture of brittle solids*. Cambridge university press.
- [Mallet et al (2013)] Mallet C, Fortin J, Guéguen Y, Bouyer F (2013) Effective elastic properties of cracked solids: an experimental investigation. *International Journal of Fracture* 181(2): DOI:10.1007/s10704-013-9855-y
- [Mallet et al (2013)] Mallet C, Fortin J, Guéguen Y, Bouyer F (2013) Brittle creep and sub-critical crack propagation in glass submitted to triaxial conditions. *Journal of Geophysical Research* (under review)
- [Ojala et al (2003)] Ojala IO, Ngwenya BT, Main IG, Elphick SC (2003) Correlation of microseismic and chemical properties of brittle deformation in lecharbriggs sandstone. *Journal of Geophysical Research* 108 (2268): DOI:10.1029/2002JB002277
- [Ojala et al (2004)] Ojala IO, Main IG, Ngwenya BT (2004) Strain rate and temperature dependence of omori law scaling constants of AE data: Implications for earthquake foreshock-aftershock sequences. *Geophysical research letters* 31(24): DOI:10.1029/2004GL020,781

- [Ougier-Simonin et al (2010)] Ougier-Simonin A, Fortin J, Guéguen Y, Schubnel A, Bouyer F (2010) Cracks in glass under triaxial conditions. *International Journal of Engineering Science* 49:105–121
- [Ougier-Simonin et al (2011)] Ougier-Simonin A, Guéguen Y, Fortin J, Schubnel A, Bouyer F (2011) Permeability and elastic properties of cracked glass under pressure. *Journal of Geophysical Research* 116: DOI:10.1029/2010JB008077
- [Paterson and Wong (2005)] Paterson MS, Wong TF (2005) Experimental rock deformation—the brittle field. Springer Verlag
- [Sayers and Kachanov (2006)] Sayers, C.M., Kachanov, M. (1995) Microcrack-induced elastic wave anisotropy of brittle rocks. *Journal of Geophysical Research* 100 (B3): 4149–4156
- [Schubnel et al (2006)] Schubnel A, Walker E, Thompson B, Fortin J, Guéguen Y, Young R (2006) Transient creep, aseismic damage and slow failure in Carrara marble: 3 deformation across the brittle-ductile transition. *Geophysical Research Letters* 33: DOI:10.1029/2006GL026619
- [Schubnel et al (2007)] Schubnel A, Jones G, Thompson B, Fortin J, Guéguen Y, Young R (2007) Fluid-induced rupture experiment on Fontainebleau sandstone: Premonitory activity, rupture propagation, and aftershocks. *Geophysical Research Letters* 34: DOI:10.1029/2007GL031076
- [Thompson et al (2005)] Thompson B, Young R, Lockner D (2005) Observations of premonitory acoustic emission and slip nucleation during a stick slip experiment in smooth faulted westerly granite. *Geophysical Research Letters* 32: DOI: 10.1029/2005GL022750
- [Walsh (1965b)] Walsh J (1965b) The effect of cracks on the uniaxial elastic compression of rocks. *Journal of Geophysical Research* 70(2):399–411
- [Walsh (1965a)] Walsh J (1965a) The effect of cracks in rocks on poisson's ratio. *Journal of Geophysical Research* 70(20):5249–5257
- [Yin (1992)] Yin H (1992) Acoustic velocity and attenuation of rocks: isotropy, intrinsic anisotropy, and stress-induced anisotropy. PhD thesis. Department of Geophysics, School of Earth Sciences, Stanford Univ.



## Role of the Pore Fluid in Crack propagation in Glass

Céline MALLET · Jérôme FORTIN · Yves  
GUÉGUEN · Frédéric BOUYER

Received: date / Accepted: date

**Abstract** Pore fluid effects, due to surface energy variation or due to chemical corrosion, in cracked glass are investigated in this paper. Both effects have been documented through experimental tests on cracked borosilicate glass samples. Creep tests are performed to investigate the slow crack propagation behavior. We compared the dry case (saturated with argon gas), the non-reactive water saturated case (commercial mineralized water), and the distilled and deionized water saturated case (pure water). Chemical corrosion effects have been observed and evidenced from pH and water composition evolution of the pure water. Then, the comparison of the dry case, the mineral water saturated case, and the corrosion case, allow to (i) evidence the mechanical effect of the presence of a pore fluid and (ii) show also the chemical effect of a glass dissolution. Both effects enhance sub-critical crack propagation.

**Keywords** Stress corrosion · Glass · Crack propagation · Fluid-rock interactions

C. Mallet  
Laboratoire de Géologie - Ecole Normale Supérieure  
24 rue Lhomond - 75005 Paris  
Tel.: +033-0144322209  
E-mail: mallet@geologie.ens.fr

J. Fortin  
Laboratoire de Géologie - Ecole Normale Supérieure  
24 rue Lhomond - 75005 Paris  
Tel.: +033-0144322214  
E-mail: fortin@geologie.ens.fr

### 1 Introduction

In reservoir conditions the evolution of the fracturing and the transport properties are of key importance. It is known that hydrologic conditions can modify the mechanical behaviour of cracked rocks [Milsch et al(2011), Milsch and Priegnitz(2012), Schepers and Milsch(2013)]. Pore fluid can contribute to crack propagation [Atkinson(1984)]: Crack propagation results from applied stress, but chemical dissolution can also take place. However, crack microstructure in rocks are complex and microstructural observations are not easy to perform.

In the following, glass samples are investigated for two reasons. The first one is linked to the french project for the storage of vitrified radioactive waste. This project is to store the glass packages under 500 m of depth, in a clay layer. In this context, the glass packages will be subjected to an applied stress, a fluid circulation, and an increase of temperature. Thus some reservoir conditions. Because these glass packages are cracked (due to their cooling after their manufacturing), the study of crack in glass under reservoir conditions are a first practical interest. The second point is that glass has a theoretical interest for crack study. Indeed, it has an homogeneous and amorphous structure [Ougier-Simonin et al(2010)]. This material is appropriate to observe and understand the behaviour of cracks.

The aim of the present work is to understand the effect of the pore fluid on crack propagation in glass samples. Two effects are expected: (i) a crack propagation enhancement due to a surface energy variation, that we will call to simplify, the mechanical effect of the presence of a pore fluid [Wiederhorn and Bolz(1970), Darot and Gueguen(1986),Lawn(1993)], and (ii) a chemical effect due to fluid/glass interactions. Chemical reactions have previously been documented [Oelkers(2001), Ferrand et al(2006), Criscenti et al(2006)]. It has been shown that a reactive fluid, in contact with a glass sample, can change its properties. A protective gel can appear [Gehrke et al(1991), Chave et al(2007), Rebiscoul et al(2007)]. A corroded zone of

higher porosity and higher permeability can be developed [Deruelle et al(2000), Techer et al(2001), MacQuarrie and Mayer(2005)].

In order to investigate the crack propagation, brittle creep experiments have been performed on thermally cracked glass samples. **This experimental protocol is chosen to reproduce the reservoir condition. Indeed, in the real storage conditions, the applied stress can be represented by a confining pressure (due to the hydrostatic loading link to the depth) and a small deviatoric stress (due to the geological context). These applied stress are constant over time. Experimentally it corresponds to a creep test.** In our case, different pore fluid conditions have been investigated (argon gas saturated which represents the dry case, non-reactive water saturated, pure water saturated). The initial microstructure of the crack network has been identified from SEM investigations [Mallet et al(2013)]. Then the brittle creep tests have been performed following the protocole of stress stepping described by Heap et al. (2009a, 2009b, 2011).

In this paper, Section 2 presents the cracked glass samples and the experimental methodology. Section 3 presents the results of four brittle creep tests. The mechanical and chemical effects on fracturing are discussed in section 4 through the description of the crack density, the cracked surface and the permeability.

## 2 Experimental methodology

### 2.1 Samples and initial crack network

The French Atomic Energy Commission (cea) laboratory (of Marcoule) produced original borosilicate glass samples with a reproducible method of slow cooling that prevents any crack formation. All glass samples have identical characteristics. The chemical composition of the investigated glass is very close to the composition of waste vitrified packages and can be found in the study of Ougier-Simonin et al (2010). Its major elements composition is recalled in Table 1. The glass is

homogeneous and the porosity is about 1% due to a few isolated air bubbles trapped into the glass matrix (this porosity is not connected). We used cylindrical specimens of borosilicate glass of 80 mm-length and 40 mm-diameter.

A thermal process is used to introduce the initial crack network. It consists of slowly heating the samples in an oven at 1°C/min up to 300°C. After 2 hours of constant temperature (to get an homogeneous temperature distribution in the sample core), samples are quenched in less than 5 s into water at room temperature. This protocol has been previously described and used by Ougier-Simonin et al (2011). The resulting crack network has been investigated on thin sections of the cracked sample using Scanning Electron Microscopy (SEM) [Mallet et al(2013)]. These authors have shown that the average crack network has an homogeneous distribution and presents a transverse isotropic symmetry. Cracks can be approximately described as penny-shaped cracks of radius,  $a=1.5\pm0.5$  mm. The crack density introduced by Walsh (1965a, b) is  $\rho_c = Na^3/V_T$ , where  $N$  is the number of cracks present in the total volume of the sample,  $V_T$ . In cracked glass samples, according to the study of Mallet et al (2013), the initial crack density introduced by the thermal shock is 0.05.

### 2.2 Triaxial apparatus, strain, elastic wave velocity and permeability measurements

Experiments were performed using a conventional triaxial apparatus (axially symmetric:  $\sigma_2 = \sigma_3$ ) installed at the Laboratoire de Géologie in the École Normale Supérieure in Paris. A simple description of this apparatus is given here, while a more complete description can be found in a previous work [Ougier-Simonin et al(2010)].

The confining pressure,  $P_C$ , is provided by a pump system using oil and can reach 100 MPa. The sample is isolated from oil by a neoprene jacket. The pore pressure,  $P_P$ , is controlled by two independent pumps related to the top and the bottom of the sample. It can reach 100 MPa. We used three pore fluids: (i) argon

gas, that is considered as the dry case in this study ; (ii) a commercial mineralized water, **that is chosen to be at equilibrium with glass composition and** is thus assumed to be a non-reactive water for glass (it will just be denoted by “non-reactive water” in the paper) ; and (iii) a corrosive fluid: a distilled and deionized water, thus a chemically pure water (which will be noted “d-d water” in the following). The axial stress, applied by a piston, can be increased up to 700 MPa for a 40 mm-diameter sample. Triaxial experiments were performed at a fixed stress rate. The temperature of the cell is kept constant and is controlled with an accuracy of  $\pm 0.5^\circ\text{C}$ .

Local strains are measured using four pairs of strain gauges (4 axial and 4 radial gauges). The gauges are glued directly onto the sample at middle high from the top. Strain gauges are Tokkyosokki TML® FCB gauges of 5 mm long and 120  $\Omega$  electrical resistance. Axial and radial strains are calculated using the average values of the four vertically and radially oriented strain gauges. Data are recorded at 1 Hz sampling frequency through a dedicated interface. From the measured axial,  $\varepsilon_{ax}$ , and radial,  $\varepsilon_{rad}$ , local strains, the local volumetric strain is obtained as  $\varepsilon_{vol} = 2\varepsilon_{rad} + \varepsilon_{ax}$ .

For the velocity measurements, 14 piezoelectric sensors are glued directly on the surface of the sample (10 P sensors, 2 S sensors horizontally polarized and 2 S sensors vertically polarized). Two P sensors are located on the top and bottom of the sample (in the end pieces of the cell). Figure 1 shows a picture of the assembly (a), a scheme of a sample that displays a schematic position of the sensors and the corresponding measured elastic wave velocities (b), and an unrolled sample to see the exact position of the 16 sensors (c). In an active mode, a pulse box sends a signal to each sensor. After propagation through the sample, the signal is recorded by the other sensors. The position of the sensors allows determining five different P and S elastic wave velocities as shown on Figure 1b:  $V_P(90^\circ)$ ,  $V_P(45^\circ)$ ,

$V_P(0^\circ)$ ,  $V_{SH}(90^\circ)$  and  $V_{SV}(90^\circ)$  (angles are defined considering the axial axes as the  $0^\circ$ ). In a passive mode the sensors record the acoustic emissions (AE) that occur within the sample and can be produced by crack propagation. AE are discretely recorded with a maximum rate of 12 events/s [Thompson et al.(2005), Schubnel et al.(2007), Fortin et al.(2009)]. AE recorded by at least 6 sensors are used. This avoids recording noise.

In addition to the previous measurements, the permeability,  $k$ , of the sample can be determined: the flow through the sample is known by measuring the volume variation of the injected fluid, versus time. Then, using the constant flow method, Darcy’s law allows to get  $k$ :

$$k = \frac{D_f L}{\Delta P A} \mu, \quad (1)$$

where  $\mu$  is the fluid dynamic viscosity,  $\Delta P$  is the pressure difference between the top and the bottom of the sample,  $L$  is the sample length,  $A$  the surface area of the cylindrical section of the sample and  $D_f$  is the volume of fluid that flows through  $A$  per unit time.

### 2.3 Experimental protocol for brittle creep tests

All tests were performed on thermally cracked samples, according to the following scheme. **The set-up of the experiment was done in two steps. During the first one, the confining pressure was increased at a low level (7 MPa) in order to have the most important permeability as possible [Ougier-Simonin et al.(2011)]. The pore fluid is then injected, with an imposed pore pressure of 5 MPa. Following the volume of injected pore fluid, the saturation of the sample is observed to be fully reached after two days. Then the second step of the set-up is to increase the confining pressure up to 15 MPa. With the pore pressure of 5 MPa, the effective confining pressure was 10 MPa.**

Temperature was maintained at 20°C. These parameters are kept constant during the complete experiments.

We use the convention that compressive stresses and compactive strains are positive. The maximum (vertical) and minimum (horizontal) principal stresses are denoted by  $\sigma_1$  and  $\sigma_3$ , respectively. The pore pressure is denoted by  $P_P$ , and the difference between the confining pressure ( $P_C = \sigma_2 = \sigma_3$ ) and the pore pressure, is referred to as "the effective confining pressure", denoted by  $\sigma'_3$ . In the same way, the "effective axial stress",  $\sigma_1 - P_P$ , is denoted  $\sigma'_1$ .

Strains are recorded at a sampling frequency of 1 Hz. Velocity measurements along the 5 traces are done every minute.

After the saturation time, the brittle creep test is performed. Four brittle creep experiments at ambient temperature are presented here. They are summarized in Table 2. We have followed the method described by Heap et al (2009a, b, 2011): the axial stress is increased first up to 80% of the maximal strength (that has been measured from preliminary tests) and kept constant during 24 hours. Then, the axial stress is increased by steps of 10 MPa each 24 hours up to failure in tertiary creep (Figure 3).

Exp 1 was performed in dry condition: the pore fluid is argon gas at a constant pore pressure,  $P_P=5$  MPa. Exp 2 was performed using the non-reactive water as pore fluid. **In this two first experiments, the pore circuit is closed from the outside, but opened on the pump system, that controls a constant pore pressure. The effective confining pressure is then completely controlled even if there is a mechanical deformation.** Exp 3 was performed with the d-d water as pore fluid. In addition, the pore circuit is open on the outside, meaning that the fluid flow is kept constant with  $P_{bottom}=4$  MPa and  $P_{top}=\text{ambient}$  (Figure 2). **Assuming that the mean pore pressure is thus 2 MPa, during this experiment the confining pressure is fixed at 12 MPa in order to keep the same effective pressure as Exp 1 and 2 (10 MPa).** The interesting points of the open

pore circuit experiment, are: (i) to continuously inject d-d water and (ii) to easily follow the fluid evolution measuring the pH of the solution at the output of the pore circuit. During this experiment, the axial stress path was the same as the two first ones, however, the sample was recovered after 10 steps before its failure, in order to observe its microstructure. Exp 4 was performed in the same pore fluid condition as the previous one (Exp 3). The axial stress path was different. Indeed, this experiment did not correspond to a stress stepping test. The axial stress was increased up to 80% of the maximal strength, and at this level, a single long creep step (of 18 days) was performed. During this long step, two fluid samples are recovered to obtain their chemical composition. The sample was then recovered.

### 3 Results

#### 3.1 Dry and non-reactive water saturated experiments (Exp 1 and 2)

Exp 1 and 2 have been conducted respectively with argon gas and non-reactive water as pore fluids. In these experiments, no-chemical corrosion is expected. Figures 4 and 5 presents the strain and elastic wave velocity results for the two complete experiments: on Figure 4a and 5a, from point 0 to A, the differential stress is increased at a constant strain rate. Point A represents the beginning of the first creep step performed at  $Q=210$  MPa. The first creep step is noted by S1. Then the increase of 10 MPa is reported followed by the succession of steps (noted  $S_i$ ).

During the first experiment, the volumetric strain shows a linear behaviour up to a threshold, noted D' (at  $Q=170$  MPa), beyond which dilatancy predominates over compaction (Figure 4a). Then, at each step, dilatancy increases. The cumulative dilatancy is -0.18%. It is observed on Figure 4b, that at the beginning of the experiment, all velocities are in the same range (around 6000 m/s for the P waves and 3300 m/s for the S waves). The velocity distribution is  $V_P(0^\circ) > V_P(30^\circ) > V_P(45^\circ) > V_P(90^\circ) > V_{SV}(90^\circ) > V_{SH}(90^\circ)$ . Then, velocities decrease beyond D'. Elastic anisotropy develops beyond this threshold and

there is a huge gap between the P-wave axial velocities and the radial ones. Indeed the difference between axial P wave and radial P wave is 2200 m/s. The S waves present also an anisotropy and the difference between the two velocities is about 400 m/s. These observations are consistent with the anisotropy evolution predicted by Gueguen and Sarout (2011). In this study, the authors demonstrate that for a vertically cracked rock, in dry condition, the S anisotropy is not negligible and varies with the damage of the sample.

In the case of the second experiment performed with non-reactive water, volumetric strain increases also linearly up to a  $D'$  threshold. This one occurs at  $Q=175$  MPa. Then the volumetric strain increases step by step to reach a global dilatancy of -0.42% at the end of the experiment (Figure 5a). The elastic wave velocity results (Figure 5b) show that initial P-wave velocities are in the same range (around 6000 m/s) and follow the same velocity distribution as for Exp 1:  $V_P(0^\circ) > V_P(30^\circ) > V_P(45^\circ) > V_P(90^\circ)$ . For the S-wave, a small anisotropy is observed at the beginning of the experiment even if the sample is supposed to be saturated. In the study of Gueguen and Sarout (2011), it is shown that in saturated condition, the S anisotropy should be negligible. According to this study, the saturation of our sample in Exp 2, was apparently not complete. This P and S-wave behaviour is constant up to the beginning of the creep steps. The  $D'$  threshold does not influence the velocities, but they decrease beyond the steps. Due to the presence of pore fluid, velocities are less sensitive to damage and the first creep step does not modify them. During creep, P-wave anisotropy develops and the difference between axial and radial P waves reaches 1200 m/s. However the S-wave anisotropy disappears indicating the saturation of the sample after all.

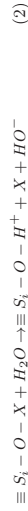
### 3.2 Reactive (d-d) water saturated experiments (Exp 3 and 4)

#### 3.2.1 *Evidences of chemical corrosion*

During Exp 3 and 4, a fluid flow of d-d water under a gradient of pore pressure of 4 MPa/8 cm was set-up. The water composition is not at chemical equilibrium with glass and chemical corrosion is expected. The permeability at  $Q=0$  was measured at  $4 \cdot 10^{-20} \text{ m}^2$  [Ougier-Simonin et al(2011)]. The initial pH value of d-d water was 6.9. During Exp 3, the pH was measured at the output of the pore circuit, at each step. After the two first steps this value increased up to 8.5 (Figure 6a), and then remained constant for the next steps. During this experiment, the sample was recovered after 10 steps to observe the microstructure. The initial crack network introduced by thermal shock is shown on Figure 7a [Mallet et al(2013)]. Vertical cracks are present but some radial cracks are observed. Propagation of the small cracks is expected. *Post-mortem* images have been obtained from a vertical section cut in the recovered sample (Figure 7b). Horizontal cracks are present but vertical cracks are dominant. Crack surfaces at the bottom of the sample (Figure 7d), where d-d water was injected are more irregular and rough than crack surfaces at the top of the sample (Figure 7c). This is consistent with the fact that d-d water was injected there. **So the path that follows the corrosive fluid is from the bottom to the top. At the bottom the fluid is the pure water, and progressively, as water dissolves glass, its chemical composition changes. The more the fluid travels the sample, the more its composition is similar to that of glass.** At the top of the sample, water composition is closer to equilibrium with glass, so that corrosion is weak, and crack surfaces are smooth.

During Exp 4, the differential stress was increased up to 80% of the maximal strength and was kept constant during 18 days. During this long creep step, with a sample submitted to a flow of d-d water, water chemical analysis of 2.0 mL fluid volumes was performed twice. **The composition of the fluid samples is determined by inductively coupled plasma-atomic emission spectrometry**

(ICP-AES). The precision is about 0.01 mg/L for a sample of 2 mL. The first analysis took place just before the beginning of the creep step. The second one took place 18 days later, at the end of the step. Table 3 summarizes the results. The dissolution amount in mass percentage (last column) is obtained knowing the sample mass (285 g). For Bore, for example, we found 6.3 mg/L in a fluid volume of 2.0 mL, thus 0.013 mg of Bore. Knowing the glass composition (13% of Bore) and the sample mass (285 g), the total mass of Bore in the initial sample is 37.05 g. The dissolution amount in mass percentage is the ratio, thus  $3.4 \cdot 10^{-5}\%$ . Silicium is also dissolved. This is consistent with known chemical reactions. There is an exchange between light cations (Na, Li) and water. Si-O-B bond is also weakened and some bore is released [Oelkers(2001), Ferrand et al(2006), Criscenti et al(2006)].



where X is an alkaline element. This reaction explains the pH increase reported previously. An alkali-depleted glass is obtained. Thus the glass structure is weakened according to [Oelkers(2001), Ferrand et al(2006), Criscenti et al(2006)] and Silicium leaves the glass structure:



### 3.2.2 Mechanical data

In the case of Exp 3 (Figure 6b) volumetric strain increases linearly up to a D' threshold close to  $Q=160$  MPa. Then the volumetric strain increases step by step to reach a cumulative dilatancy of -1.1% after the tenth step. The experiment was stopped before failure in order to observe the damaged sample (see previous section). Unloading the sample shows that below the stress level corresponding to D', cracks partially close, so that at  $Q=0$ , an irreversible dilatancy of 0.8% remains. A comparison between Figures 4a, 5a and 6b shows that the overall dilatancy is

larger with d-d water than in the non-reactive water saturated case. The dry case (Argon) shows the smallest dilatancy.

Elastic wave velocities (Figure 6c and d) show a similar behaviour than that observed for Exp 2: They are constant from  $Q=0$  up to the beginning of the creep steps. Velocities are not modified by the small damage of the sample from D' to the creep steps. They decrease beyond the first creep step. Elastic anisotropy develops for P waves. Axial and radial velocities differ by 1200 m/s. Yet S waves do not show anisotropy. The tenth step is the last one, and then the differential stress was decreased. The elastic wave velocities increase during unloading. It indicates some crack closure.

A comparison between Figures 4b, 5b and 6c shows that the anisotropy measured by the elastic wave velocity is less important in the water (mineral and d-d) saturated cases than in the dry case. This is consistent with theoretical predictions [Guéguen and Sarout(2011)].

In the case of Exp 4 volumetric strain increases by 0.2% during the long single step (Figure 8). A residual volumetric strain of 0.05% is observed after the sample unloading. It is not really possible to compare this experiment to the others.

## 4 Discussion

### 4.1 Mechanical effect vs Chemical effect

We recall here what is called in our study the "mechanical effect" of the pore fluid. It is not linked to an effective pressure effect. It is the effect of the pore fluid in cracks that reduces the surface energy,  $\gamma$ . In this case no chemical reaction is considered. To understand this mechanical effect, the non-reactive water saturated case is compared to the dry case.

The chemical effect is considered to be due to the presence of a reactive fluid that leads to a chemical dissolution of glass particles. To observe it we compare the non-reactive water saturated case to the d-d water saturated case.

Comparing the strain results for Exp 1 and 2 indicates immediately that the damage of the sample is increased by the presence of a pore fluid. Because non-reactive water has no chemical effects (no dissolution) for glass, this evidences the mechanical effect of the pore fluid presence. It is in good agreement with a theoretical law that describes the crack propagation [Lawn(1975)]. This law links the crack propagation rate ( $dl/dt$ ) to a balance between applied stress (through the stress intensity factor,  $K_I$ ) and surface energy between glass and the pore fluid ( $\gamma$ ):

$$\frac{dl}{dt} \propto e^{\frac{1}{2}(\gamma_1^2/E - \gamma_2)} \quad (4)$$

where  $E$  is the Young's modulus,  $T$  is the temperature and  $s$  corresponds to the surface area of an elementary crack jump. It is found in the literature that  $\gamma$  has a lower value in the case of water-mineral interface [Clark et al (1980); Renschle (1989); Meredith (1990)]. Thus if cracks are saturated with water, propagation takes place at lower stress. This explains why in our experiments we observe a more important dilatancy in the water saturated case (compared to the dry case).

Considering the case of a reactive fluid, Exp 3 is performed with d-d water. A chemical reaction of dissolution takes place and the sample damage is increased. Between the dry and the non-reactive water cases, volumetric strains are increased by 180%. And between the non-reactive water and the d-d water cases (thus the non-reactive and the reactive cases), volumetric strains are increased by 140%. At laboratory time scale, the mechanical effect appears to induce a larger dilatancy increase than the chemical effect.

**It is now interesting to link our experimental results to some mathematical models. For example in the study of Pichler and Cario (2009), an obser-**

vation is done on an excavated rock mass that desaturate and dry progressively: because the near-surface layers dry faster a cracking of the material increases. This observation has been model using a thermodynamics-based crack propagation law. In two following studies [Pichler and Dormieux (2010 a & b)], the model implies that the opening/closure behavior of the cracks is governed by an effective pressure, linked to the saturation condition of the cracks. In this model, the average crack underpressure make the crack opening smaller. This is in good correlation with our observation on the dry cracks. On the contrary, they observe a larger crack opening once fluid entry into the cracks is observed.

#### 4.2 Crack density

Elastic wave velocities can be interpreted in terms of a damage parameter: the crack density [Walsh(1965b), Walsh(1965a)]. This parameter is expressed as  $\rho_c = \sum a^3/V_T$  [Bristow(1960), Brace et al(1968)], where  $a$  is the average crack radius and  $V_T$  is the total considered volume. It can be generalized into a tensor,  $\alpha$  [Kachanov(1980)] that allows to describe the anisotropy. Using the framework of the work of Kachanov [Guéguen and Kachanov(2011)],  $\alpha$  can be related to the stiffness tensor through the non-interaction approximation (NIA). Then the extra compliance due to crack is obtained.

The stiffness components are obtained from the elastic wave velocities [Sayers and Kachanov(1995)]. In a transverse isotropic symmetry, the material is defined with 5 independents parameters:  $E_0$ ,  $\nu_0$  and the three principal components of  $\alpha$ :  $\alpha_1$ ,  $\alpha_2$  and  $\alpha_3$ . In our particular cylindrical symmetry,  $\alpha_2 = \alpha_3$ . We obtained from Figures 4b, 5b and 6c,  $\alpha_1$ , the vertical crack density, and  $\alpha_3$ , the horizontal crack density for Exp 1, 2 and 3 (Figure 9). In each case, the horizontal crack density is constant. The vertical crack density increases from 0.05 to 0.15 for the dry case, to 0.23 for the non-reactive water saturated case and 0.25 for the d-d water saturated



case.

#### 4.3 Crack surface area

Crack density can be interpreted in terms of crack surface area. We consider “penny-shaped” cracks of small aperture. From a mechanical point of view this simple description is often considered to be a correct one. Indeed, in the framework of the work of Kachanov (a global review is described in Gugen and Kachanov (2011)), it is presented that a crack with any roughness can be contained into two penny-shaped cracks: a larger and a smaller one that give an upper and a lower bound for the crack behavior description. In this description, the surface area of one crack is  $2\pi a^2$ , where  $a$  is the crack radius. Thus the global cracked surface of the sample is  $S_c = 2\pi a^2 N$ , where  $N$  is the number of cracks. The global crack density is  $\rho_c = \alpha_1 + 2\alpha_3 = Na^3/V_T$ . Thus the total cracked surface is  $S_c = 2\pi\rho_c V_T/a$ . The average crack radius is known to be close to 1.5 mm [Mallet et al(2013)]. The total volume of the sample is a cylinder of 80 mm-height and 40 mm-diameter. The considered crack density is those obtained in the previous section (0.15, 0.23 and 0.25 for the three creep tests). Thus, for our three creep test, the final value of the crack density indicates that the cracked surface areas are 0.10 m<sup>2</sup> for Exp 1, 0.13 m<sup>2</sup> for Exp 2 and 0.16 m<sup>2</sup> for Exp 3. **For this method, the error bar is linked to the accuracy of the known radius (1.5 +/- 0.25 mm according to Mallet et al 2013) and the crack density (from 0.15 to 0.25 +/- 0.01). Thus the crack surface area is known with an accuracy of 0.025, 0.028 and 0.033 m<sup>2</sup> for Exp 1, Exp 2 and Exp 3, respectively. It corresponds to an average error bar of 20%.**

These values can be compared to what can be derived from the chemical water composition. Indeed, considering that Boron is the tracer of the chemical corrosion, the chemical reaction rate is known at this temperature from literature [Ockers(2001); Ferrand et al(2006); Criscenti et al(2006)] to be,  $V_r=6 \cdot 10^{-6}$  g/m<sup>2</sup>/days.

6.3 mg/L of Bore have been found in the fluid sample of 2.0 mL. This has been obtained after 18 days. Thus there is a  $12.6 \cdot 10^{-6}$  g release of Boron in 18 days, i.e.,  $7 \cdot 10^{-7}$  g/days. Assuming that the reaction velocity is constant we calculate a crack surface area of 0.12 m<sup>2</sup>. This represents the total surface area in contact with the corrosive fluid. **For this method, the error bar is mainly linked to the accuracy of the chemical analysis. This is done with an accuracy of 0.01 mg/L (thus 1%).**

We do not conclude about which one is the better method. However, because the two obtained values are closed, we can consider that the two methodologies are equivalent.

#### 4.4 Permeability

Crack density can also be interpreted in terms of permeability. According to Dienes (1982) and Gueguen and Dienes (1989), the permeability can be approximated as:

$$K \propto f w^2 \rho_c \quad (5)$$

where  $w$  is the crack aperture and  $f$  represents the fraction of connected cracks. For the third experiment, due to the open fluid circulation, we are able to calculate the evolution of the permeability at each moment (corrected by the strain increase which is independently measured with the strain gauges): Figure 10a. We observe that the permeability is very low at the beginning ( $3.9 \cdot 10^{-20}$  m<sup>2</sup>). At the same effective confining pressure and without differential stress, the permeability was found previously to be  $2.5 \cdot 10^{-20}$  m<sup>2</sup> [Ougier-Simonin et al(2011)]. Increasing the differential stress leads to an increase in permeability. At the final differential stress of 310 MPa, the permeability is about  $1.5 \cdot 10^{-19}$  m<sup>2</sup>. The increase of the permeability is not smooth. During the first, the eighth and the tenth steps there are some permeability jumps (highlighted by an arrow). After the seventh step, the permeability increase seems to have accelerated.



Plotting the permeability versus the crack density (Figure 10b) indicates that there is at the beginning a linear part. It indicates that during this part, the permeability increases results of the crack density increase. According to equation (5), there is no variation of crack aperture or crack connectivity. Beyond a crack density of 0.22 (that correspond to the eighth step) the behaviour of the permeability is no more linear. It indicates that  $f$  or  $w$  varies.

We could interpret the permeability jumps highlighted by the arrows by jumps crack connectivity (variation of  $f$ ). However, if  $w$  and  $f$  were constant, the permeability should be  $1.2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$  (end of the dashed line on end of Figure 10b). The final permeability is  $1.7 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ . Two permeability jumps due to the  $f$  increase contribute to  $0.3 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$ . It seems that  $0.2 \cdot 10^{-19} \text{ m}^2$  should come from the  $w$  evolution. This indicates that there was a crack aperture increase of 12%.

This remark on an increase of  $w$  is in agreement with the study of Detwiler et al (2003) who point that chemical corrosion can be interpreted in terms of crack aperture.

#### 4.5 Chemical effect of the d-d water corrosion: complementary tests

How chemical glass dissolution influences the mechanical behavior? Complementary tests have been performed in order to answer that question. Some constant strain rate tests have been performed on samples, corroded or not. The recovered sample of Exp 4 has been tested in a classical constant strain rate tests (Exp 5) and compared to a thermally cracked sample (Exp 0) and to another one which was thermally cracked and leached (Exp 6). The industrial leaching process has been done at ambient pressure and at 90°C. It is a dynamic leaching: the thermally cracked sample is placed in a bath of corrosive fluid (pure water) during two weeks with a renewal fluid flow of 2.9 mL/min. Exp 0 is a reference experience, Exp 5 and 6 are performed on the corroded samples. During these constant strain rate tests the differential stress was increased up to failure at a strain rate of  $2 \cdot 10^{-6} \text{ s}^{-1}$ . The performed tests are summarized in Table 4.

In constant strain rate experiments, the axial stress-axial strain plot is linear up to the failure (Figure 11a) that occurs at an axial stress of  $Q=335 \text{ MPa}$  (for the reference sample) and 288 and 305 MPa for the two corroded samples. The static Young's modulus is obtained from the slope of the linear plot. The value is:  $E=66.5 \text{ GPa}$  for the reference sample. It is lower for the two corroded samples:  $E=53.1 \text{ GPa}$  and  $45.0 \text{ GPa}$ .

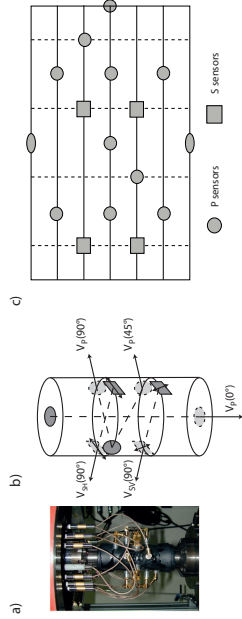
The behaviour of the reference sample and the corroded samples are different. The reference sample presents a linear behaviour with a small dilatancy that does not become dominant over the compaction. In comparison, the two corroded samples present a huge dilatancy that becomes dominant over the compaction.

#### 5 Conclusion

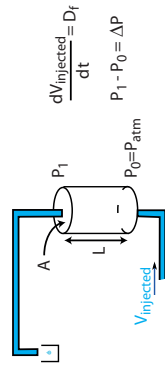
Sub-critical crack propagation has been observed in cracked glass submitted to constant applied stress experiments. Three tests with different pore fluid conditions are performed: a dry test, a non-reactive water saturated test and a chemically-reactive water saturated test. The comparison of the two first cases indicate that the presence of a pore fluid decrease the surface energy and allow the crack propagation at lower stress level. A higher dilatancy is observed in the presence of pore fluid. In the third case, a corrosion is measured with a pH variation at laboratory time scale. Chemical dissolution of glass enhance the crack propagation and the sample dilatancy.

Comparing the mechanical effect due to the presence of a pore fluid and the chemical effect due to glass dissolution, it appears that the first effect is dominant over the second (at laboratory scale). Some complementary tests show that chemical dissolution of glass result in a decrease of the glass Young modulus.

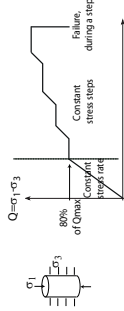
**Acknowledgements** We gratefully acknowledge our industrial partners AREVA NC and ANDRA for their financial support of this project. The authors thank the CEA-LCIT for fruitful discussion, for managing the whole project and for providing the glass samples.



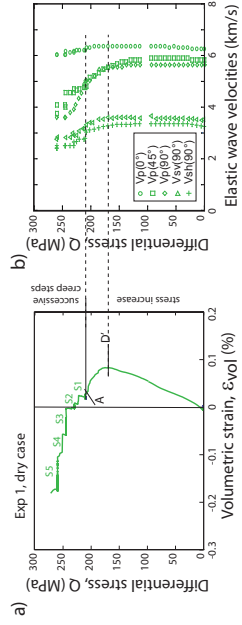
**Fig. 1** a) Picture of a sample connected to the triaxial cell. b) Principle of elastic wave velocity measurements (according to their orientation). c) Scheme of an unrolled sample to show the distribution of the 16 sensors.



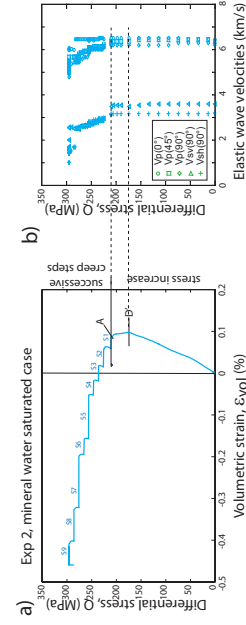
**Fig. 2** Pore fluid circuit scheme. The pore fluid circuit is open and the fluid can be sampled at the output. The permeability is obtained from Darcy's law.



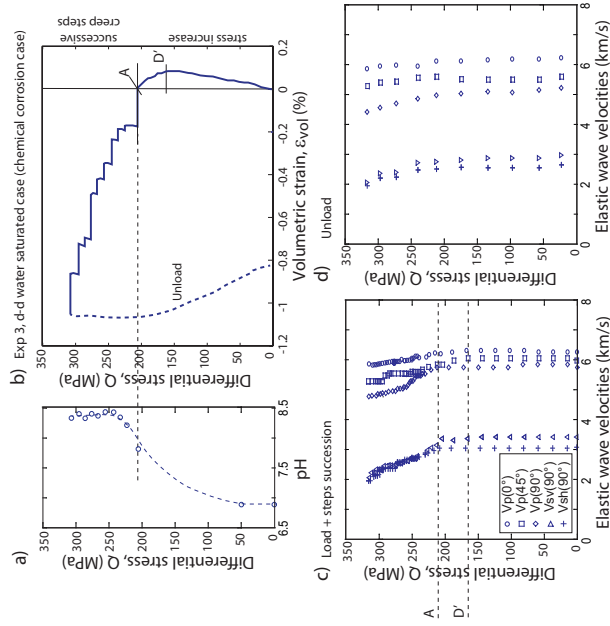
**Fig. 3** Brittle creep protocol in compression.



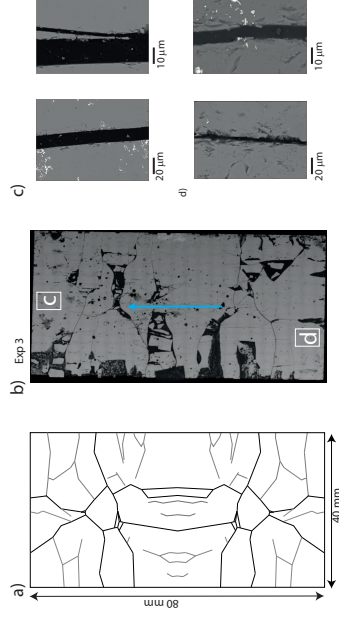
**Fig. 4** Result for Exp 1: a) Differential stress versus volumetric strain. The part between 0 and Point A is the differential stress increase. Then, the noted  $S_1$  are the successive creep steps. b) Differential stress versus Elastic wave velocities.



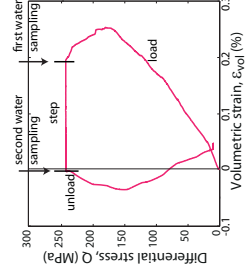
**Fig. 5** Result for Exp 2: a) Differential stress versus volumetric strain. The part between 0 and Point A is the differential stress increase. Then, the noted  $S_2$  are the successive creep steps. b) Differential stress versus Elastic wave velocities.



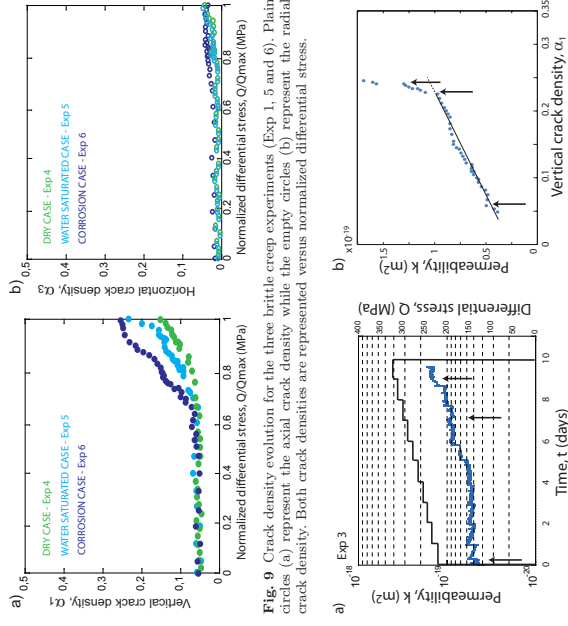
**Fig. 6** Result for Exp 3: a) Differential stress versus the measured pH of the pore fluid at the output of the pore fluid circuit (circles are the measurements, the dashed line is the plotted trend). b) Differential stress versus the volumetric strain. The part between 0 and Point A is the differential stress increase. Then, the noted  $S_i$  are the successive creep steps. The dashed curve is the unloading part of the experiment. c) and d) Differential stress versus Elastic wave velocities for the loading and the unloading.



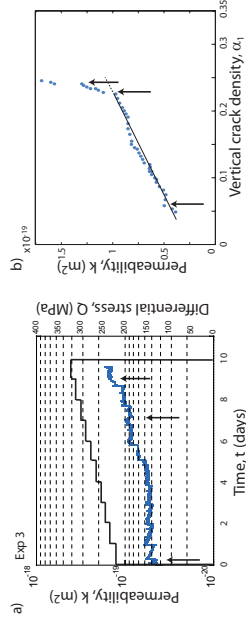
**Fig. 7** a) Vectorized view of the initial crack network introduced by the thermal shock [Mallet et al(2013)]. b) Complete vertical section of the sample of Exp 3 (SEM picture). The fluid flow goes from bottom to top. c) Zoom of two cracks at the top of the sample. d) Zoom of two cracks at the bottom of the sample.



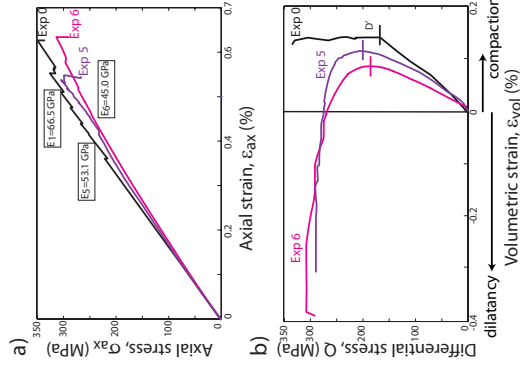
**Fig. 8** Differential stress versus volumetric strain for the load, creep step and unload parts for Exp 4.



**Fig. 9** Crack density evolution for the three brittle creep experiments (Exp 1, 5 and 6). Plain circles (a) represent the axial crack density while the empty circles (b) represent the radial crack density. Both crack densities are represented versus normalized differential stress.



**Fig. 10** a) Permeability result for Exp 3 versus time. Stress steps are indicated by the black line. Some permeability jumps are observed and highlighted by an arrow. b) Permeability versus vertical crack density. A first linear part is observed. The permeability jumps are noted by an arrow.



**Fig. 11** Constant strain rate results for Exp 0 5 and 6. Exp 0 is the reference experiment performed on a thermally cracked sample. Exp 5 and 6 are experiments performed on samples thermally cracked and corroded (with brittle creep test - Exp 5 or with fixation - Exp 6). a) Axial stress versus axial strain. b) Differential stress versus volumetric strain.

**Table 1** Major elements composition of the borosilicate glass samples. The other elements correspond each to less than 1%.

Element	glass composition (%)
Si	43
B	13
Na	9
Al	5
Ca	4
Nd	4
Zr	3
Zn	3
Fe	3
Li	2

**Table 2** Performed brittle creep tests.

	Exp 1	Exp 2	Exp 3	Exp 4
Pore fluid	Argon gas	Non-reactive water	d-d water	d-d water
Pore fluid circuit	closed	closed	open	open
Stress path	4 steps	9 steps	10 steps	one long single step
At the end	Failure	Failure	No failure, sample recovery	No failure, sample recovery

**Table 3** Chemical analysis during Exp 4. The first fluid analysis (S1) has been done before the creep step and the second one (S2) at the end of the creep step. The fluid volumes that were analyzed are of 2.0 mL.

Element	S1 (mg/L)	S2 (mg/L)	corrosion amount (%)
Si	0.4	3.0	$4.2 \cdot 10^{-6}$
B	$<0.05$	6.3	$3.4 \cdot 10^{-5}$
Na	2.3	15.0	$9.9 \cdot 10^{-5}$
Fe	$<0.05$	0.9	$2.1 \cdot 10^{-5}$
Li	$<0.05$	2.3	$8.1 \cdot 10^{-5}$

**Table 4** Performed constant strain rate tests. The pore fluid is always non-reactive water.

	Exp 0	Exp 5	Exp 6
Sample preparation	TT-300°C	recovery after Exp 4	TT-300°C + dynamic lexiviation
Sample state	reference sample	corroded sample	corroded sample
Q (at failure)	335 MPa	288 MPa	305 MPa
E <sub>0</sub> (GPa)	66.5	53.1	45.0

References

[Atkinson(1984)] Atkinson B (1984) Subcritical crack growth in geological materials. *Journal of Geophysical Research* 89(B6):4077-4114

[Brace et al(1968)] Brace W, Walsh J, Frangos W (1968) Permeability of granite under high pressure. *Journal of Geophysical Research* 73(6):2225-2236

[Bristow(1960)] Bristow J (1960) Microcracks, and the static and dynamic elastic constants of annealed and heavily cold-worked metals. *British Journal of Applied Physics* 11, no 2:p. 81

[Chave et al(2007)] Chave T, Frugier P, Ayrat A, Gin S (2007) Solid state diffusion during nuclear glass residual alteration in solution. *Journal of nuclear materials* 362(2):466-473

[Clark et al(1980)] Clark V, Tittmann B, Spencer T (1980) Effect of volatiles on attenuation (q- 1) and velocity in sedimentary rocks. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* (1978-2012) 85(B10):5190-5198

[Criscenti et al(2006)] Criscenti LJ, Kubicki JD, Brantley SL (2006) Silicate glass and mineral dissolution: calculated reaction paths and activation energies for hydrolysis of a q3 si by h3o+ using ab initio methods. *The Journal of Physical Chemistry A* 110(1):198-206

[Darot and Gueguen(1986)] Darot M, Gueguen Y (1986) Slow crack growth in minerals and rocks: Theory and experiments. *Pure and Applied Geophysics* 124(4):677-692

[Dervelle et al(2000)] Dervelle O, Spalla O, Barboux P, Lambard J (2000) Growth and ripening of porous layers in water altered glasses. *Journal of non-crystalline solids* 261(1):237-251

[Detwiler et al(2003)] Detwiler RL, Glass RJ, Bourcier WL (2003) Experimental observations of fracture dissolution: The role of pedet number on evolving aperture variability. *Geophysical research letters* 30(12)

[Dienes(1982)] Dienes JK (1982) Permeability, percolation and statistical crack mechanics. In: *Proceedings of the 23rd Symposium on Rock Mechanics, Issues in Rock Mechanics*, University of California, Berkeley, California, August 25-27, 1982.

[Ferrand et al(2006)] Ferrand K, Abdelouas A, Grambow B (2006) Water diffusion in the simulated french nuclear waste glass son 68 contacting silica rich solutions: Experimental and modeling. *Journal of nuclear materials* 355(1):54-67

[Fortin et al(2009)] Fortin, J., S. Stanchits, G. Dresen, and Y. Gueguen (2009), Acoustic emissions monitoring during inelastic deformation of porous sandstone: comparison of three modes of deformation. *Pure and Applied Geophysics*, pp. doi:10.1007/s00402-009-0479-0.

[Gehrke et al(1991)] Gehrke E, Ullner C, Hähner M (1991) Fatigue limit and crack arrest in alkali-containing silicate glasses. *Journal of materials science* 26(20):5445-5455

- [Gueguen and Dienss(1989)] Gueguen Y, Dienes J (1989) Transport properties of rocks from statistics and percolation. *Mathematical geology* 21(1):1–13
- [Guéguen and Kachanov(2011)] Guéguen Y, Kachanov M (2011) Effective elastic properties of cracked rocks - an overview, in, *mechanics of crustal rocks*. CISM Courses and Lectures Volume 538:73–125
- [Guéguen and Srout(2011)] Guéguen Y, Sarout J (2011) Characteristics of anisotropy and dispersion in cracked medium. *Tectonophysics* 503(1):165–172
- [Heap et al(2009a)] Heap, Baud, and Meredith] Heap M, Baud P, Meredith P (2009a) Influence of temperature on brittle creep in sandstones. *Geophysical Research Letters* 36(19):doi: 10.1029/2009GL039.373
- [Heap et al(2009b)] Heap, Baud, Meredith, Bell, and Main] Heap M, Baud P, Meredith P, Bell A, Main I (2009b) Time-dependent brittle creep in darley dale sandstone. *Journal of Geophysical Research* 114(B7):doi: 10.1029/2008JB006.212
- [Heap et al(2011)] Heap M, Baud P, Meredith P, Vinciguerra S, Bell A, Main I, et al (2011) Brittle creep in basalt and its application to time-dependent volcano deformation. *Earth and Planetary Science Letters* 307(1-2):71–82
- [Kachanov(1980)] Kachanov M (1980) Continuum model of medium with cracks. *Journal of the engineering mechanics division* 106:1039–1051
- [Lawn(1975)] Lawn B (1975) An atomistic model of kinetic crack growth in brittle solids. *Journal of Materials Science* 10(3):469–480
- [Lawn(1993)] Lawn B (1993) *Fracture of brittle solids*. Cambridge university press
- [MacQuarrie and Mayer(2005)] MacQuarrie KT, Mayer KU (2005) Reactive transport modeling in fractured rock: A state-of-the-science review. *Earth-Science Reviews* 72(3):189–227
- [Mallet et al(2013)] Mallet C, Fortin J, Guéguen Y, Boyer F (2013) Effective elastic properties of cracked solids: an experimental investigation. *International Journal of Fracture* 181(2):doi:10.1007/s107.704-013-9855-y
- [Meredith(1990)] Meredith PG (1990) Fracture and failure of brittle polycrystals: an overview. In: *Deformation Processes in Minerals, Ceramics and Rocks*, Springer, pp 5–47
- [Milsch and Prigntitz(2012)] Milsch H, Prigntitz M (2012) Evolution of microstructure and elastic wave velocities in dehydrated gypsum samples. *Geophysical Research Letters* 39(24)
- [Milsch et al(2011)] Milsch H, Prigntitz M, Blicher G (2011) Permeability of gypsum samples dehydrated in air. *Geophysical Research Letters* 38(18)
- [Oelkers(2001)] Oelkers EH (2001) General kinetic description of multioxide silicate mineral and glass dissolution. *Geochimica et Cosmochimica Acta* 65(21):3703–3719
- [Ougier-Simonin et al(2010)] Ougier-Simonin A, Fortin J, Guéguen Y, Schubnel A, Boyer F (2010) Cracks in glass under triaxial conditions. *International Journal of Engineering Science* 49:105–121

- [Ougier-Simonin et al(2011)] Ougier-Simonin A, Guéguen Y, Fortin J, Schubnel A, Boyer F (2011) Permeability and elastic properties of cracked glass under pressure. *Journal of geophysical research* 116:doi:10.1029/2010JB008.077
- [Pichler and Carion (2009)] Pichler B, Carion S (2009) Damage Evolution in an Underground Gallery Induced by Drying. *Int J Multiscale Comp Eng*7, 65–89
- [Pichler and Dormieux (2010a)] Pichler B, Dormieux L (2010) Cracking risk of partially saturated porous media- Part I J Num Anal Meth Geomech 34, 135–157
- [Pichler and Dormieux (2010b)] Pichler B, Dormieux L (2010) Cracking risk of partially saturated porous media- Part II J Num Anal Meth Geomech 34, 159–186
- [Rebiscoul et al(2007)] Rebiscoul D, Rietord F, Né F, Frugier P, Cubitt R, Gin S (2007) Water penetration mechanisms in nuclear glasses by x-ray and neutron reflectometry. *Journal of non-crystalline solids* 353(22):2221–2230
- [Reuschlé(1989)] Reuschlé T (1989) *Les fluides et l'évolution des propriétés mécaniques des roches*. PhD thesis
- [Sayers and Kachanov(1995)] Sayers, C., and M. Kachanov (1995), Microcrack-induced elastic wave anisotropy of brittle rocks, *Journal of Geophysical Research*, 100(B3), 4149–4156.
- [Schepers and Milsch(2013)] Schepers A, Milsch H (2013) Relationships between fluid-rock interactions and the electrical conductivity of sandstones. *Journal of Geophysical Research: Solid Earth* 118(7):3304–3317
- [Schubnel et al(2007)] Schubnel, A., B. Thompson, J. Fortin, Y. Guéguen, and R. Young (2007), Fluid-induced rupture experiment on fontainebleau sandstone: Premontory activity, rupture propagation, and aftershocks, *Geophysical Research Letters*, 34(doi:10.1029/2007GL031076).
- [Techer et al(2001)] Techer I, Advocat T, Lancelot J, Liotard JM (2001) Dissolution kinetics of basaltic glasses: control by solution chemistry and protective effect of the alteration film. *Chemical Geology* 176(1):235–263
- [Thompson et al.(2005)] Thompson, B., R. Young, and D. Lockner (2005), Observations of premonitory acoustic emission and slip nucleation during a stick slip experiment in smooth faulted westerly granite, *Geophysical Research Letters*, 32, DOI: 10.1029/2005GL022.750.
- [Walsh(1965a)] Walsh J (1965a) The effect of cracks in rocks on poisson's ratio. *Journal of Geophysical Research* 70(20):5249–5257
- [Walsh(1965b)] Walsh J (1965b) The effect of cracks on the uniaxial elastic compression of rocks. *Journal of Geophysical Research* 70(2):399–411
- [Wiederhorn and Bolz(1970)] Wiederhorn S, Bolz L (1970) Stress corrosion and static fatigue of glass. *Journal of the American Ceramic Society* 53(10):543–548

